



Spectroscopie d'absorption ultra-rapide de rayonnement X pour l'étude de la matière en régime transitoire.

Ludovic Lecherbourg

► To cite this version:

Ludovic Lecherbourg. Spectroscopie d'absorption ultra-rapide de rayonnement X pour l'étude de la matière en régime transitoire.. Physique [physics]. Ecole Polytechnique X, 2007. Français. NNT : . pastel-00003732

HAL Id: pastel-00003732

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00003732>

Submitted on 22 Jul 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée à l'École Polytechnique
pour l'obtention des grades de :

**Philosophiae doctor (Ph.D.)
Docteur de l'École Polytechnique**

par
Ludovic LECHERBOURG

<p>SPECTROSCOPIE D'ABSORPTION ULTRA-RAPIDE DE RAYONNEMENT X POUR L'ÉTUDE DE LA MATIÈRE EN RÉGIME TRANSITOIRE.</p>
--

Soutenue publiquement le 17 Décembre 2007 devant le Jury composé de :

Président du jury	Jean-Claude Gauthier
Rapporteurs	Hervé Cailleau Gilles Maynard
Examineur interne	Guy Ross
Invité	Robin Marjoribanks
Directeurs de recherche	Patrick Audebert Jean-Claude Kieffer

À ma femme, Valeisha,
avec tout mon amour.

Résumé

Dans ce mémoire, j'étudie la physique des milieux denses, plasmas ou solides, en utilisant la spectroscopie d'absorption de rayonnement X. Au moyen de sources produites par interaction laser-matière, nous avons mesuré les spectres d'absorption de plasmas d'aluminium et brome, ainsi que ceux du dioxyde de vanadium (VO_2). Les mesures des co-efficients d'absorption permettent de sonder la matière dense et d'étudier ses propriétés. Les expériences sont réalisées suivant le même principe : elles utilisent un schéma expérimental identique, appelé pompe-sonde.

Lorsque que la matière est dense, l'absorption d'un atome est modifiée par le milieu environnant. Dans un plasma, ce sont principalement les transitions lié-lié qui sont influencées : les profils des raies spectrales sont modifiés. Dans un solide, les positions des atomes voisins de l'atome absorbeur modifient la structure des seuils d'absorption (transition lié-libre). L'étude de cette structure permet de mesurer les paramètres du matériau, et donne des informations comme l'état des bandes électroniques ou encore les distances interatomiques.

Les expériences réalisées au LULI ont permis de sonder des plasmas dans le régime mal connu de la Warm Dense Matter. Un des paramètres clés, est que le plasma est caractérisé de manière indépendante (diagnostic FDI). Cela permet une meilleure comparaison de l'absorption mesurée avec un calcul réalisé avec le modèle numérique OPA-S. Les expériences réalisées à l'INRS ont mené à la réalisation d'un système expérimental ayant les caractéristiques permettant l'étude de la dynamique de solides présentant des transitions de phase ultra- rapide. Pour cela, nous avons utilisé le dioxyde de vanadium comme système modèle permettant de tester la faisabilité de la méthode.

In this work, we study the physics of dense matter, plasmas or solids, using x-ray absorption spectroscopy. Through the use of sources produced by laser-matter interaction, we have measured the absorption spectra of aluminum and bromine plasmas, as well as those of vanadium dioxide (VO_2). The measurement of absorption coefficients allows us to probe the dense matter and to study its properties. The experiments are carried out following the same principle : they use the same experimental set-up, called pump-probe.

When the matter is dense, the absorption properties of an atom are modified by the surrounding environment. In a plasma, it is mainly the bound-bound transitions which are altered : the shapes of those spectral rays are modified. In a solid, the position of the neighbouring atoms in relation to the absorbing atom modify the structure of absorption levels (bound-free transition). The study of this structure allows us to measure the parameters of the material, and provides information such as the state of the electronic band or the interatomic gaps.

The experiments carried out at the LULI have allowed us to probe plasmas in the relatively unknown regime of the Warm Dense Matter. One of the key parameters is that the plasma is characterised independently (FDI diagnostic). It allows for a better comparison of the measured absorption against a calculation made with the numerical model OPA-S. The experiments carried out at INRS have led to the realisation of an experimental system having the characteristics which allow the study of the dynamics of solids showing ultra-fast phase transition. For those experiments, we have used vanadium dioxide as a model system allowing us to test the feasibility of the method.

Étudiant

Directeurs de recherche

Remerciement

Tout d'abord, je tiens à remercier ma mère, qui m'a intelligemment orienté et soutenu tout le long de ma scolarité. Ensuite, je ne dois pas négliger de remercier quelques-uns de mes professeurs qui, durant mon parcours, m'ont poussé à continuer.

Bien évidemment, je remercie les directions du LULI et de l'INRS-EMT pour m'avoir accueilli dans leurs laboratoires. J'ai pu y réaliser cette thèse dans d'excellentes conditions. Ces deux laboratoires sont très bien équipés et ont su s'entourer de personnel qualifié et compétent.

Je voudrais également remercier les membres du Jury, pour le temps qu'ils ont pris pour lire et évaluer cette thèse. Je les remercie aussi des remarques pertinentes associées à mon travail.

Tout au long de ces trois années (et même un peu plus), j'ai été dirigé à l'INRS par Jean-Claude Kieffer, et au LULI par Claude Chenais-Popovics suivie de Patrick Audebert. Je les remercie pour m'avoir fait partager leurs expériences, ainsi que leurs compétences tant sur la physique expérimentale que théorique. Je les remercie également des conseils professionnels avisés qu'ils m'ont donné. J'ai été très bien accueilli dans leurs différentes équipes. Aussi, je tiens à remercier Claude pour les heures qu'elle a passées à relire mon manuscrit, et de ses conseils avisés.

Je tiens à remercier chaleureusement tout le personnel de ces deux laboratoires. Ils sont bien trop nombreux pour les individualiser. Ils se répartissent officiellement entre l'administration, les techniciens/ingénieurs lasers et mécaniques. Mais ils se retrouvent tous dans leurs qualités personnelles et professionnelles, permettant de faire avancer toutes ces recherches. La vie du chercheur serait bien triste sans eux!

Je remercie également tous les chercheurs présents dans ces deux laboratoires, et également ceux d'ailleurs (notamment au CEA), pour les diverses discussions qui m'ont permis d'élargir mes horizons.

Comment ne pas remercier mille fois Sylvain Fourmaux, plus un ami qu'un collègue. Lui qui a été toujours là (même quand je n'y étais pas), qui m'a beaucoup appris et qui a démontré une belle conscience professionnelle, qui a eu le courage de lire les premières ébauches de mon manuscrit!

Ces années se sont également passées dans de très bonnes conditions grâce à tous mes collègues thésards avec qui j'ai partagé de nombreux très bons moments. Il y a cette équipe de Français implantés à l'INRS, comme Oliv, Xa, et Riad. Et puis de l'autre côté, nous avons d'autre pas toujours Français comme Perci, Béré, Benji et Alessandra. Aussi, je tiens à remercier Nikos avec qui j'ai partagé mon bureau ainsi que ces trois années du début à la fin.

Finalement, je remercie toute ma famille et mes amis pour m'avoir toujours soutenu sur le plan personnel, même quand j'étais loin. Je laisse une dernière pensée à ma femme, Valeisha, qui a lu et relu le manuscrit afin de dénicher les innombrables petites fautes.

Merci pour tout,

Ludovic

Table des matières

Résumé	i
Remerciement	iv
Liste des figures	xi
Liste des tableaux	xvii
1 Introduction	1
1.1 Contexte	1
1.1.1 Principe de la spectroscopie d'absorption X par laser	1
1.1.2 Matière en régime transitoire	3
1.2 Objectifs	4
1.2.1 Absorption de plasma dense et chaud (LULI)	4
1.2.2 Transition de phase ultra-rapide dans du VO ₂ (INRS)	5
1.3 Principe de l'expérience	7
1.4 Méthodologie	9
1.5 Organisation du manuscrit	10

2	Généralités sur l'absorption du rayonnement	13
2.1	Absorption d'un photon	13
2.1.1	Transition lié-lié	14
2.1.2	Transition lié-libre	17
2.1.3	Transition libre-libre	18
2.2	Influence du milieu	18
2.2.1	Spectres de raies	18
2.2.2	Décalage du seuil d'absorption	20
2.2.3	Phénomène autour des seuils : XAS (EXAFS & XANES)	21
2.3	Conclusion	24
3	Moyens expérimentaux et numériques	25
3.1	Lasers	27
3.1.1	Principe d'un laser CPA	27
3.1.2	Le laser 100 TW du LULI	28
3.1.3	Les lasers de l'INRS	29
3.2	Spectromètres	31
3.2.1	Cristal tronconique	32
3.2.2	Réseau concave à champ plan	35
3.3	Détecteurs	36
3.3.1	Caméra CCD	37
3.3.2	Caméra à balayage de fente	39
3.4	Diagnostic plasma : FDI	42
3.4.1	Principe	42
3.4.2	Le faisceau sonde	44
3.4.3	Interféromètre de Mach-Zehnder	44
3.4.4	Information temporelle	46

3.4.5	Extraction de l'information	47
3.5	Simulation hydrodynamique : MULTI-FS	49
3.5.1	Description du modèle	49
3.5.1.1	Les équations hydrodynamiques	50
3.5.1.2	Résolution des équations de Maxwell	50
3.5.1.3	Conductivité électrique haute fréquence	51
3.5.1.4	Chauffage par conduction thermique	52
3.5.1.5	Relaxation électron-ion	52
3.5.1.6	Les équations d'état	53
3.5.2	Exemple d'une simulation d'une feuille d'aluminium	54
3.6	Simulation de physique atomique	57
3.6.1	TRANSPEC	57
3.6.2	OPA-S	58
3.7	Conclusion	60
4	Spectroscopie d'absorption X de plasmas denses	61
4.1	Introduction	61
4.2	Caractéristiques expérimentales	65
4.2.1	Géométrie	65
4.2.2	Structure de l'échantillon sondé	67
4.2.3	Caractérisation de la source X	68
4.2.4	Mesure de la densité surfacique	70
4.3	Caractérisation du plasma	71
4.3.1	Mesure indirecte de la densité et de la température	72
4.3.1.1	Validation du modèle 1D MULTI-FS	72
4.3.1.2	Paramètres de la simulation	73
4.3.1.3	Intégration temporelle pendant 4 ps	75

4.3.2	Effet temporel	76
4.4	Absorption d'un plasma d'aluminium	77
4.4.1	Analyse spatiale de spectres : dépendance en énergie	78
4.4.2	Évolution temporelle des spectres	80
4.4.2.1	Présentation des résultats expérimentaux	80
4.4.2.2	Présentations des spectres théoriques	83
4.4.2.3	Discussions pour les temps intermédiaires	84
4.4.2.4	Discussions pour les temps extrêmes	86
4.4.3	Récapitulatif des plasmas sondés	89
4.5	Absorption d'un plasma de brome	90
4.6	Conclusion	92
5	Spectroscopie d'absorption X d'un solide	95
5.1	Introduction	96
5.2	Le dioxyde de vanadium	100
5.2.1	La transition de phase	100
5.2.2	Étude optique ultra-rapide de la transition de phase photo-induite	102
5.2.3	Diffraction X femtoseconde	102
5.2.4	Absorption X de la transition de phase photo-induite	102
5.3	Description de l'expérience	103
5.3.1	Principaux éléments et géométrie	103
5.3.2	Les échantillons de VO ₂	106
5.4	Caractérisation du spectromètre	108
5.4.1	Utilisation d'un élément léger pour la calibration : le carbone	108
5.4.2	Résolution spectrale théorique	111
5.4.2.1	Influence de la taille de la source	111
5.4.2.2	Influence de la taille des pixels	112

5.4.3	Quelques particularités à prendre en compte dans l'analyse des images	112
5.5	Caractérisation de la source X	114
5.5.1	Utilisation d'éléments lourds : spectre continu	115
5.5.2	Brillance de la source X	116
5.5.3	Caractérisation temporelle	118
5.6	Absorption de rayonnement X dans du VO ₂	121
5.6.1	Mesure en statique	121
5.6.2	Mesure en dynamique	124
5.7	Conclusion	127
6	Conclusion	129
6.1	Synthèse	129
6.2	Perpectives	130
6.2.1	Perspective générale	130
6.2.2	Perspectives spécifiques	131
	Liste de mes publications	133
	Bibliographie	135

Liste des figures

1.1	Principaux mécanismes durant l'interaction laser-matière : émission de rayonnement et éjection de particules.	2
1.2	Rayonnement X émis par un plasma constitué (a) d'un élément léger (Al) et (b) d'un élément lourd (La).	3
1.3	Différences des niveaux d'énergie entre un plasma d'aluminium (a) dilué et (b) dense.	5
1.4	Représentation schématique des niveaux des bandes de valence et de conduction, ainsi que les structures cristallines du VO_2	6
1.5	Schéma de principe des expériences pompe-sonde présentées dans la suite de ce travail.	7
1.6	Deux phénomènes d'absorption : une structure fine (XAS) autour des seuils, et les transitions entre deux niveaux atomiques.	8
2.1	Spectre type d'émission de rayonnement X d'un plasma d'aluminium (300 eV - 0,1 g/cm ³) calculé par TRANSPEC.	14
2.2	Niveaux d'énergie à calculer pour différents éléments : a) légers, b) mi-lourds, et c) lourds.	15
2.3	Schéma présentant les structures d'absorption du rayonnement X proche des seuils (XAS).	22
3.1	Schéma représentant les différents moyens expérimentaux et numériques utilisés dans ce travail.	26

3.2	Principe d'amplification d'une impulsion laser en utilisant la technique CPA. .	28
3.3	Photo de la salle expérimentale du laser 100 TW au LULI, présentant le compresseur sous vide (gauche) et l'enceinte d'interaction (droite).	29
3.4	Schéma présentant les différents composants de l'installation 10 TW de l'INRS (avant compression).	30
3.5	Spectre du faisceau laser 100 Hz après doublage, centré autour de 400 nm (2ω). .	31
3.6	Schéma (plan x - y) du mécanisme de focalisation du spectromètre conique. .	33
3.7	Schéma représentant deux vues des divers composants du spectromètre à cristal tronconique.	34
3.8	Schéma représentant la géométrie du réseau.	35
3.9	Comparaison entre la dispersion numérique du réseau concave à champ plan et un ajustement numérique d'ordre 2.	37
3.10	Représentation d'une coupe d'une caméra CCD identifiant les différents constituants.	38
3.11	Efficacité quantique de la caméra CCD Princeton Instruments PI-MTE :1300B. .	38
3.12	Principe de fonctionnement d'une caméra à balayage de fente.	40
3.13	Courbe présentant les caractéristiques d'une photocathode de 100 nm de KBr. .	41
3.14	Schéma présentant les principaux éléments du diagnostic FDI : le faisceau diagnostic, l'interféromètre de Mach-Zehnder, et le spectrographe.	43
3.15	Schéma de principe de l'interféromètre de Mac-Zehnder, présentant les différences trajets optiques du faisceau laser.	45
3.16	Interférogramme spatio-temporelle et la correspondance temps/longueur d'onde du faisceau sonde.	47
3.17	Reconstruction de la phase expérimentale.	48
3.18	Différents couples de densités-températures le long des 100 cellules du plasma, pour différents délais après l'impulsion laser, entre 1 et 50 ps.	55
3.19	Comparaison de l'évolution hydrodynamique pour deux équations d'états : QEOS et SESAME.	56
3.20	Couples densité-température le long du plasma pour différents temps, et pour 2 équations d'états : QEOS et SESAME.	57
3.21	Modèle collisionnel-radiatif utiliser dans TRANSPEC (en bleu : effet collisionnel, en violet : effet radiatif).	59

4.1	Diagramme densité-température présentant la région définie comme la <i>warm dense matter</i> pour l'aluminium.	62
4.2	Schéma présentant les différentes étapes de l'analyse des résultats.	64
4.3	Schéma présentant les principaux éléments du dispositif expérimental.	66
4.4	Schéma représentant la cible et les trois faisceaux en interaction avec elle : le faisceau de chauffage, le faisceau diagnostic, et la sonde de rayonnement X. . .	67
4.5	Caractéristiques de la source de rayonnement X : durée d'émission et résolution spatio-spectrale.	69
4.6	Spectres permettant d'évaluer la fluctuation tir à tir de la source X.	70
4.7	Mesure de la densité surfacique sur les bords de la tache focal.	71
4.8	Reconstruction de la phase expérimentale.	72
4.9	Comparaison entre les phases théoriques et expérimentales pour 3 chauffages différents d'une feuille de 70 nm d'aluminium.	74
4.10	Influence de l'équation d'état sur l'évolution de la phase calculée.	74
4.11	Couples de densité-température le long du plasma, et la zone en bleue représente l'intégration temporelle de 4 ps.	76
4.12	Évolution temporelle des pourcentages des fractions ioniques et de l'ionisation moyenne calculées avec TRANSPEC.	77
4.13	Spectre 80 nm d'Al. (a) laser, (b) spectre brut, (c), spectres en fonction de l'énergie laser.	79
4.14	Spectre 40 nm d'Al. (a) laser, (b) spectre brut, (c), spectres en fonction de l'énergie laser.	79
4.15	Six spectres expérimentaux, mesurés pour différents délais entre la pompe et la sonde.	81
4.16	Six coupes au centre de la tache focale, des spectres précédents.	82
4.17	Couples de densité-température correspondant aux 6 spectres de la figure précédente.	83
4.18	Différentes transmissions calculées le long du plasma pour un temps donné, et pour 3 cellules (sur les 2 bords et au milieu).	84
4.19	Quatres spectres de transmission expérimentaux comparés à ceux calculés par OPA-S.	85
4.20	Spectre au temps court : plasma chaud et dense.	87

4.21	Spectre au temps long : plasma froid et dilué.	88
4.22	Diagramme densité-température présentant les points de mesures effectués par chauffage radiatif, laser, et ceux de notre expérience.	89
4.23	a) Spectre brut d'un plasma de brome. b) Phase mesurée par FDI (carrés) et calculée avec MULTI-FS.	90
4.24	Couples de densité-température du plasma de KBr pour différents temps, centrés sur 6 ps (± 2 ps).	91
4.25	Spectres expérimental et théoriques du brome.	92
5.1	Coefficient d'absorption du VO ₂ obtenu par Cavalleri et al. (2005) pour deux résolutions spectrales différentes : 100 meV et 4 eV.	98
5.2	Absorption du VO ₂ obtenue par Cavalleri et al. (2004) présentant les phases à basse et à haute températures, pour deux gammes d'énergie.	99
5.3	Mailles cristallines du VO ₂ dans ses phases basse température (monoclinique) et haute température (rutile).	100
5.4	Représentation des niveaux moléculaires et atomiques dans le VO ₂ pour les deux phases, basse et haute températures.	101
5.5	Résultats obtenus par Abbate et al. (1991) sur l'absorption de rayonnement X dans du VO ₂ , dans les phases basse et haute température.	103
5.6	Schéma expérimental présentant les principaux éléments : lasers, cible, filtres, réseau, et détecteurs (caméra CCD ou caméra à balayage de fente).	104
5.7	Membrane carré d'environ 2 mm ² composée de 200 nm de Si ₃ N ₄ et de 130 nm de VO ₂ , ouverte dans le substrat de silicium.	106
5.8	Schéma représentant la source X, l'échantillon, le réseau, et le plan de détection, permettant de mesurer la référence et l'absorption.	107
5.9	Configuration de l'échantillon permettant de mesurer simultanément l'absorption du VO ₂ froid et excité.	108
5.10	Spectre intégré en temps émis par un plasma de carbone avec (a) et sans (b) filtre de titane.	109
5.11	Coupes des spectres d'émission du carbone intégré dans le temps, provenant de la figure 5.10	110
5.12	Spectre obtenu à partir d'une cible de tantale, présentant les lignes verticales dues à l'absorption par la grille de nickel.	113
5.13	Rapport des spectres entre les différentes zones présentées dans la figure 5.12.	114

5.14	Spectre de rayonnement X pour différents éléments : le molybdène ($Z=42$), l'argent ($Z=47$), le lanthane ($Z=57$) et le tantale ($Z=73$).	115
5.15	Spectres d'émission résolus en temps (a) du carbone et (b) du tantale, mesurés à l'aide de la caméra à balayage de fente PX1.	118
5.16	Coupes en fonction du temps du spectre du carbone de la figure 5.15-a.	119
5.17	Coupe suivant l'axe temporel du spectre de tantale, mesuré par une caméra à balayage de fente, et présenté sur la figure 5.15-b.	120
5.18	Schéma représentant la perte de résolution temporelle du réseau, due aux différents trajets optiques.	121
5.19	Absorbance mesurée et théorique d'un échantillon de 130 nm de VO_2 , dans sa phase basse température.	122
5.20	(a) Tache focale du faisceau d'excitation. (b) Membrane de VO_2 dont la partie droite est excitée. (c) Spectre spatio-spectral mesuré par la caméra CCD.	125
5.21	Absorbance des spectres de VO_2 . Chaque courbe correspond à l'air d'intégration de 120 pixels, présenté sur la figure 5.20 (b e tc).	126
5.22	Pourcentage de différence entre 2 spectres de référence (barres pleines) et entre un spectre excité et non-excité (barres rouges) de ceux présentés figure 5.21.	127

Liste des tableaux

5.1	Gamme spectrale accessible en fonction du détecteur utilisé.	105
5.2	Tableau montrant les correspondances entre les longueurs d'onde mesurées, et les longueurs d'onde théoriques.	111
5.3	Paramètres utilisés pour obtenir les spectres de la figure 5.14 (intensité laser et nombre de tirs), et le rapport signal sur bruit obtenu à deux longueurs d'onde différentes.	116
5.4	Récapitulatif du signal obtenu pour 3 longueurs d'onde différentes, en terme de nombre de photon, rapport signal sur bruit, temps d'accumulation pour obtenir 1 % de rapport signal sur bruit, flux, et brillance.	117
5.5	Récapitulatif des positions en énergie des différents pics correspondant aux différentes bandes d'énergie électronique mesurées (figure 5.19), et la comparaison avec celles mesurées par Abbate et al. (1991).	123

1.1 Contexte

Depuis une dizaine d'années, la possibilité d'engendrer des impulsions laser ultra-brèves, allant d'une dizaine de picosecondes (10^{-11} s) à quelques femtosecondes (10^{-15} s), a considérablement accru les moyens d'études dans de nombreux domaines de la physique comme la physique non linéaire, la physique des solides et la physique moléculaire. En effet, les mécanismes de relaxation, de vibration, de transfert d'énergie électron-réseau, et les temps de fluorescence conduisent tous à des échelles temporelles nettement inférieures à la dizaine de picosecondes, pouvant aller jusqu'à la centaine de femtosecondes. En physique des plasmas, la possibilité d'atteindre des éclairagements lasers supérieurs à 10^{17} W/cm² a permis de produire des plasmas pendant une très courte durée, ayant une densité proche de celle du solide et des températures supérieures à 100 eV (~ 1 million de degrés Celsius¹). Ces plasmas ont permis d'étudier en laboratoire la matière proche des conditions stellaires.

L'utilisation d'impulsion laser ultra-brève a permis l'étude d'une nouvelle physique, en permettant de produire des sources de rayonnement X pour réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption de la matière en régime transitoire. Ce type de source est aussi utilisé dans d'autres domaines d'application, comme la lithographie ou la tomographie. De plus, l'interaction laser-plasma permet de produire des sources d'ions ou d'électrons, ou même des sources de rayonnement attoseconde.

1.1.1 Principe de la spectroscopie d'absorption X par laser

En focalisant une impulsion laser de puissance sur une cible solide, on produit un plasma de haute densité à haute température. Pendant le processus, on produit du rayonnement, et différentes particules plus ou moins énergétiques.

¹1 électron-Volt (eV) $\sim 11\,600^\circ\text{C}$

La figure 1.1 présente les principaux effets de l'interaction laser-matière. Le plasma, produit pendant l'interaction, émet du rayonnement dans une large gamme spectrale, allant du rayonnement infra-rouge au rayonnement gamma. La matière est éjectée, soit en agrégats, soit en particules individuelles comme les électrons ou les protons. Certains électrons sont accélérés dans le champ électromagnétique du laser, et ionisent les zones froides de la cible. Ces dernières émettent du rayonnement X appelé « rayonnement K_α ».

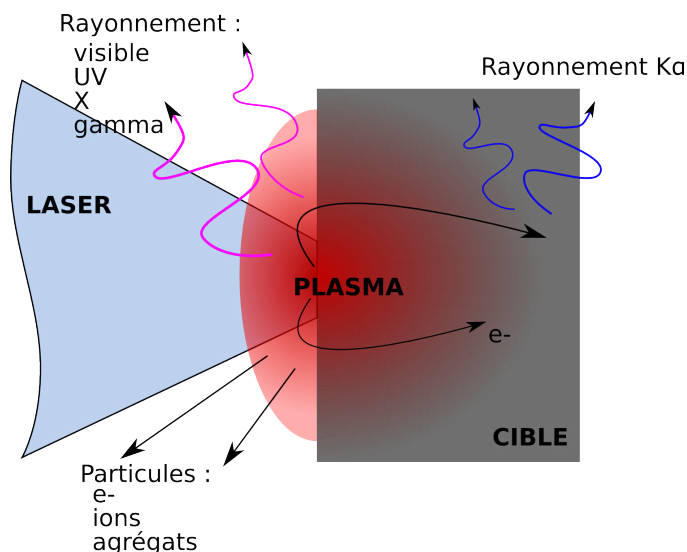


Figure 1.1 – Principaux mécanismes durant l'interaction laser-matière : émission de rayonnement et éjection de particules.

En fonction du type de cible utilisée (l'élément ou la géométrie) et des paramètres du laser (la durée d'impulsion ou l'intensité), l'absorption de l'énergie laser sera différente. Le plasma ainsi produit aura des propriétés différentes. Afin d'illustrer une propriété spectrale, la figure 1.2 présente le rayonnement émis pour des plasmas produits à partir de deux cibles différentes². La première est constituée d'un élément léger : l'aluminium ($Z = 13$), la seconde d'un élément lourd : le lanthane ($Z = 57$). Les spectres d'émission du rayonnement X sont très différents. Pour une même gamme d'énergie, comprise entre 200 et 3 000 eV, on observe un spectre de raies discrètes (isolées) pour l'aluminium, correspondant aux transitions atomiques de l'aluminium. Alors que pour le lanthane, les transitions se superposent et on obtient un quasi-continuum.

Il est aussi possible d'utiliser l'interaction laser-matière pour produire des sources de rayonnement X continues. Ces sources X ont en plus l'avantage d'être brèves, de l'ordre de la dizaine de picosecondes, correspondant à la durée de vie du plasma. Ce type de source est particulièrement bien adapté pour réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption.

²Les simulations ont été réalisées à l'aide du code TRANSPEC (paragraphe 3.6.1). Voir le paragraphe 2.1.1 pour la physique associée.

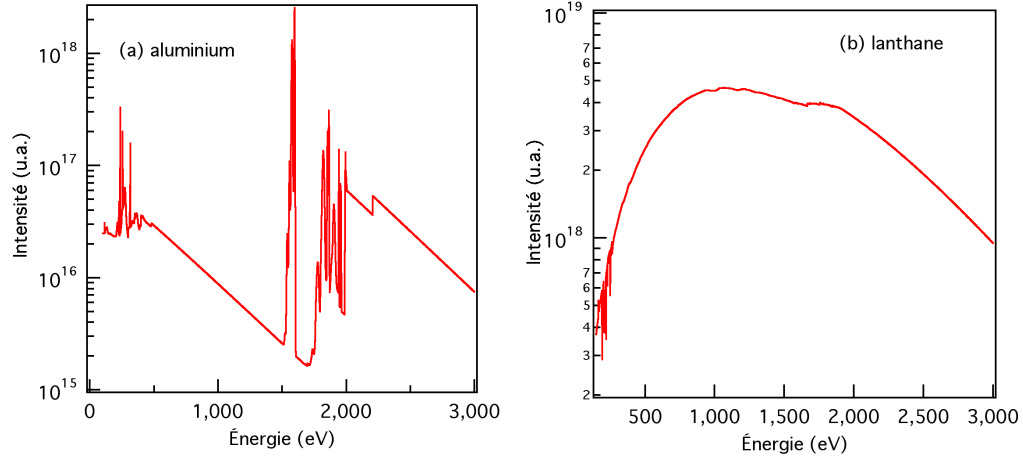


Figure 1.2 – Rayonnement X émis par un plasma constitué (a) d'un élément léger (Al) et (b) d'un élément lourd (La).

1.1.2 Matière en régime transitoire

Les lasers déposent leur énergie dans la matière sur une courte distance : l'énergie est absorbée par les électrons dans l'épaisseur de peau. Ceux-ci transmettent leur énergie aux atomes par collision. Ce mécanisme provoque des effets ultra-rapides dans la matière, comme des transitions de phase ultra-rapides ou produit des plasmas très denses, en fonction de l'énergie laser incidente.

Les plasmas denses

Les plasmas produits par interaction laser-matière permettent d'atteindre des densités et des températures élevées pendant un très court instant. Les propriétés radiatives de ces plasmas sont importantes pour la physique de l'intérieur des étoiles (Turck-Chieze et al., 2004) et les plasmas de fusion par confinement inertiel (Lindl et al., 2004). Les investigations expérimentales des coefficients de photoabsorption dans les plasmas sont un champ de recherche actif depuis plusieurs années, ainsi que le test des modèles théoriques des plasmas denses et chauds produit par chauffage radiatif. Cette méthode assure un chauffage uniforme à des températures de 80 eV et des densités allant de 0,001 à 0,01 g/cm³ dans des conditions proches de l'équilibre thermodynamique local (ETL) (Perry et al., 1996; Winhart et al., 1996; Back et al., 1997; Merdji et al., 1998; Renaudin et al., 2006).

Des plasmas de plus haute densité ayant de faibles gradients peuvent être produits en irradiant un solide avec un faisceau laser intense. Quand une impulsion laser sub-picoseconde irradie une feuille très mince (quelques dizaines de microns) avec une intensité entre 10^{14} – 10^{16}

W/cm^2 , le chauffage de la feuille en surface est suivi par une rapide conduction thermique et produit un plasma de haute densité, à température modérée. Ensuite le plasma se détend et se refroidit (Wentzovitch et al., 1994; Yakovlev & Urpin, 1980).

Les transitions de phase ultra-rapide

Dans l'industrie de la micro-électronique, on cherche de nouveaux matériaux, plus réactifs, plus efficaces. C'est pourquoi il est nécessaire de connaître en profondeur les mécanismes internes, comme les transitions de phase. Certaines de ces transitions s'effectuent sur des échelles de l'ordre de la centaine de femtosecondes, et les mécanismes de transition ultra-rapide sont mal connus.

Une des premières expériences démontrant le potentiel des sources de rayonnement X produites par laser pour l'absorption était basée sur l'étude de la structure de XANES, résolu en temps, et utilisant une cible solide de tantale pour produire la source (Raksi et al., 1996).

1.2 Objectifs

L'objectif de ce travail est d'étudier les propriétés de la matière dense en régime transitoire, en réalisant des expériences de spectroscopie d'absorption ultra-rapide résolues en temps, utilisant des sources de rayonnement X larges bandes produites par interaction laser-matière. En effet, l'étude des coefficients d'absorption de la matière permet d'obtenir des informations sur les propriétés du milieu absorbeur.

Ce travail a été réalisé dans deux laboratoires différents, le LULI pour *Laboratoire pour l'Utilisation de Lasers Intenses*, et l'INRS-EMT pour *Institut National de la Recherche Scientifique, Énergie, Matériaux et Télécommunications*. Les différentes installations de ces deux laboratoires ont permis l'étude de l'absorption de rayonnement X par deux matériaux différents. Au LULI, on dispose d'une installation laser de forte énergie, qui permet de produire des volumes relativement gros de plasmas uniformes, en densité et en température. À l'INRS, les systèmes lasers sont de moindre énergie, mais ont une cadence de répétition élevée qui permet de moyennner sur un grand nombre de résultats et de mesurer des taux d'absorption très faibles, inférieurs à 0,5 %.

1.2.1 Absorption de plasma dense et chaud (LULI)

Les spectres d'un plasma de faible densité sont bien connus pour les éléments légers, mais à forte densité, tels qu'ils existent dans les intérieurs stellaires, ils sont peu connus, car

leur production en laboratoire est difficile. L'objectif est de mesurer les effets d'une forte densité sur les spectres d'absorption de rayonnement X dans un plasma chauffé produit par une impulsion laser intense. Lors de la production du plasma, la matière va changer d'état rapidement et ses propriétés radiatives, en particulier d'absorption, vont se modifier. En étudiant le spectre d'absorption, et en connaissant les paramètres internes du plasma comme la densité et la température, il est possible de mesurer les propriétés du milieu en termes d'opacité spectrale.

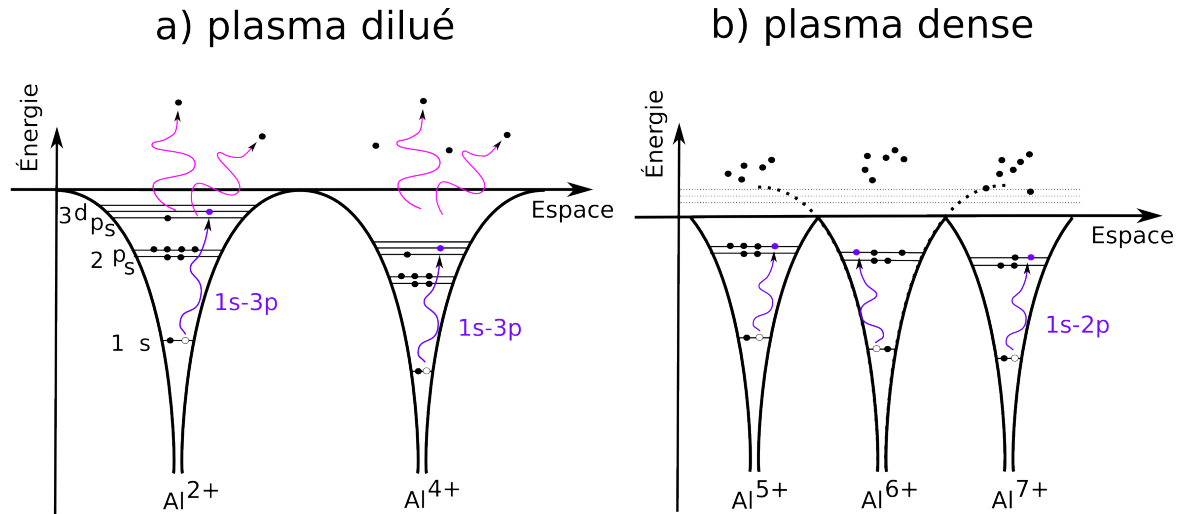


Figure 1.3 – Différences des niveaux d'énergie entre un plasma d'aluminium (a) dilué et (b) dense.

La figure 1.3 représente schématiquement les puits de potentiel des atomes d'aluminium dans deux cas, pour un plasma dilué, de densité très inférieure à celle du solide, et pour un plasma de densité supérieure à la densité solide. Dans le premier cas, pour un plasma dilué, le niveau 3 est localisé dans le puits de potentiel, les transitions 1s-3p sont permises. Dans le second cas, pour un plasma dense, le niveau d'énergie de nombre quantique principal $n = 3$ est délocalisé. C'est-à-dire qu'il n'existe plus dans le puit de potentiel, et les transitions entre le niveau 3p et 1s n'existent pas. Les propriétés de ces raies d'absorption seront différentes en fonction de la densité et de la température.

1.2.2 Transition de phase ultra-rapide dans du VO_2 (INRS)

L'objectif est d'étudier le processus de transition de phase du dioxyde de vanadium (VO_2) en mesurant des spectres d'absorption de rayonnement X. En effet, si l'on étudie le spectre proche des seuils d'absorption, on observe une structure XAS (acronyme anglais *de X-ray Absorption Structure*). On peut la séparer en deux sous-structures qui donnent des informations différentes. La structure proche du seuil, appelée XANES (*X-ray Absorption Near Edge Structure*), donne des informations sur la structure de bande, comme le nombre d'électrons

constituant les bandes de valence et de conduction. La structure éloignée du seuil, appelée EXAFS (*Extended X-ray Absorption Fine Structure*), permet d'obtenir les distances inter-atomiques. Ces deux structures seront abordées plus précisément dans le paragraphe 2.2.3. En étudiant ces structures en fonction du temps pendant la transition de phase, il sera donc possible de remonter au mécanisme moteur de la transition.

La figure 1.4 représente schématiquement les niveaux d'énergie moléculaires des bandes de valence et de conduction du VO_2 , ainsi que l'organisation de la structure cristalline pour les deux phases, basse et haute température. Dans la première, la structure est monoclinique et les bandes de valence sont séparées à l'énergie de Fermi, le VO_2 est semi-conducteur. Par contre, à haute température, la structure est rutile, et il y a une modification des bandes d'énergie : les bandes $3d_\pi$ et $3d_\parallel$ ne sont plus séparées, le VO_2 est conducteur.

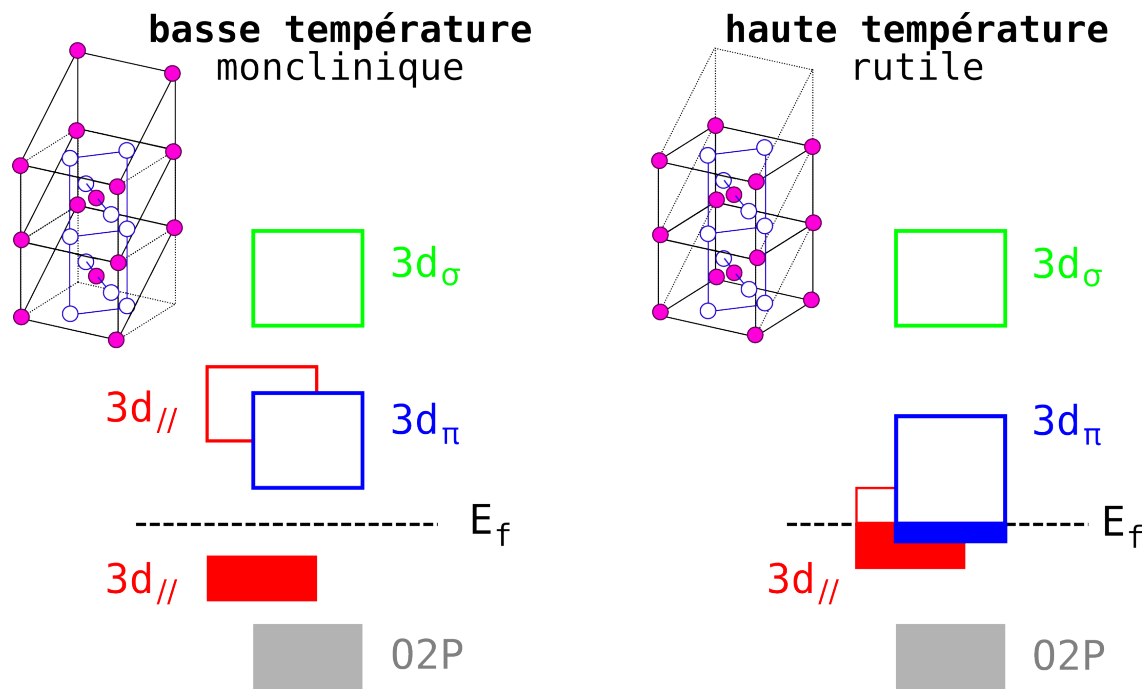


Figure 1.4 – Représentation schématique des niveaux des bandes de valence et de conduction dans du VO_2 , ainsi que l'organisation de la structure cristalline pour les deux phases, basse température et haute température.

Nous souhaitons mettre en place une expérience de spectroscopie d'absorption de rayonnement X ayant les caractéristiques permettant d'observer le XAS résolu en temps, en utilisant une source produite par laser. Le cas du VO_2 étudié ici a été mis en place pour tester la faisabilité de la méthode, c'est-à-dire que nous avons caractérisé une source de rayonnement X, produite par laser, permettant d'observer l'évolution dans le temps du XAS.

1.3 Principe de l'expérience

Le schéma de principe des expériences de spectroscopie d'absorption par laser présenté dans ce travail est montré à la figure 1.5. Une impulsion laser est divisée en deux. Une partie de l'impulsion, appelé la pompe, va induire la dynamique de l'échantillon. Dans notre cas, elle produit un plasma ou provoque la transition de phase. La seconde partie de l'impulsion est focalisée sur une cible solide, qui va produire la source de rayonnement X : la sonde. La cible et l'intensité laser sont choisies pour obtenir un spectre large dans la gamme d'énergie de l'élément étudiée. Le délai entre la pompe et la sonde est parfaitement contrôlé, car celles-ci proviennent de la même impulsion laser. Ensuite on mesure le spectre transmis par l'échantillon à l'aide d'un spectromètre adapté à la gamme d'énergie étudiée.

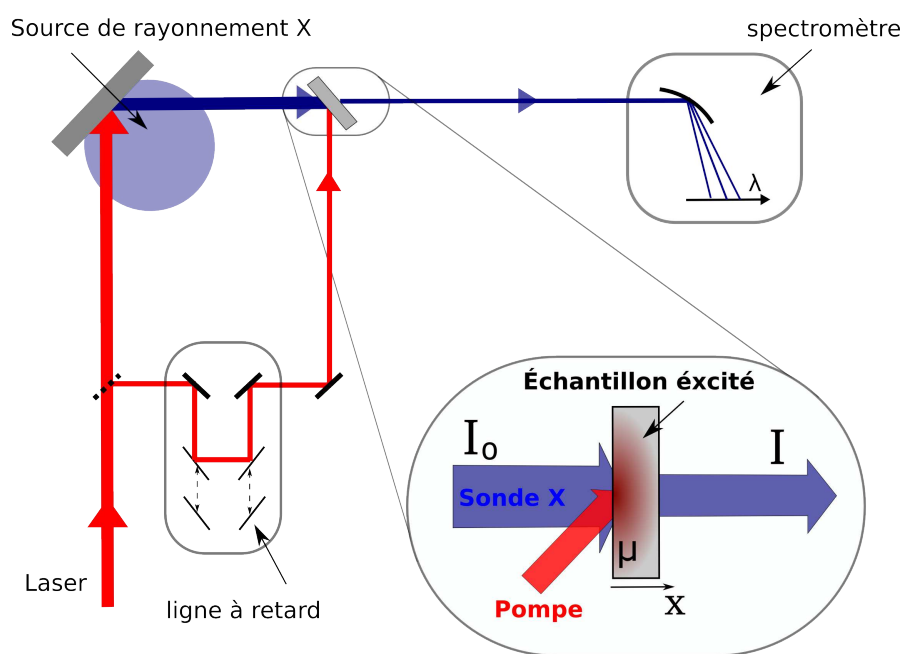


Figure 1.5 – Schéma de principe des expériences pompe-sonde présentées dans la suite de ce travail.

L'évolution temporelle de la dynamique de l'échantillon peut être mesurée au moyen de deux techniques différentes. Soit en utilisant une sonde de rayonnement X, ayant une durée comparable ou supérieure au phénomène étudié, accompagnée d'un détecteur qui résout en temps, comme une caméra à balayage de fente (voir 3.3.2). Soit en utilisant une source très brève et un détecteur qui intègre en temps, comme une caméra CCD. Il suffit alors de contrôler le décalage entre la pompe et la sonde pour obtenir une série d'images à différents instants.

L'absorption de rayonnement X permet de mesurer les coefficients d'absorption de l'échantillon sondé. L'encadré sur la figure 1.5 montre les grandeurs importantes pour une expérience d'absorption : le rayonnement incident I_0 , idéalement de spectre continu, qui est absorbé le

long d'une tranche de matière ayant un coefficient d'absorption μ , et le rayonnement transmis I . La relation de Beer-Lambert entre le rayonnement absorbé et le rayonnement incident est la suivante :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \exp\left(-\int \mu(\lambda, x) \cdot dx\right) \quad (1.1)$$

où μ dépend de la longueur d'onde λ , et de la distance x parcourue dans l'échantillon, et des propriétés du milieu comme la densité et la température. Ceci est très important car il peut y avoir de forts gradients en fonction de x .

La figure 1.6 représente schématiquement deux types d'absorption dans les cas d'un solide et d'un plasma. Pour le solide, il y existe des oscillations autour des seuils d'absorption. En effet, l'absorption est sensible aux bandes d'énergie proches des seuils (les bandes de valence et de conduction, voir figure 1.4), et les oscillations sont dues aux atomes autour de l'élément absorbeur, qui modifient l'absorption par rapport à un atome isolé (paragraphe 2.2.3).

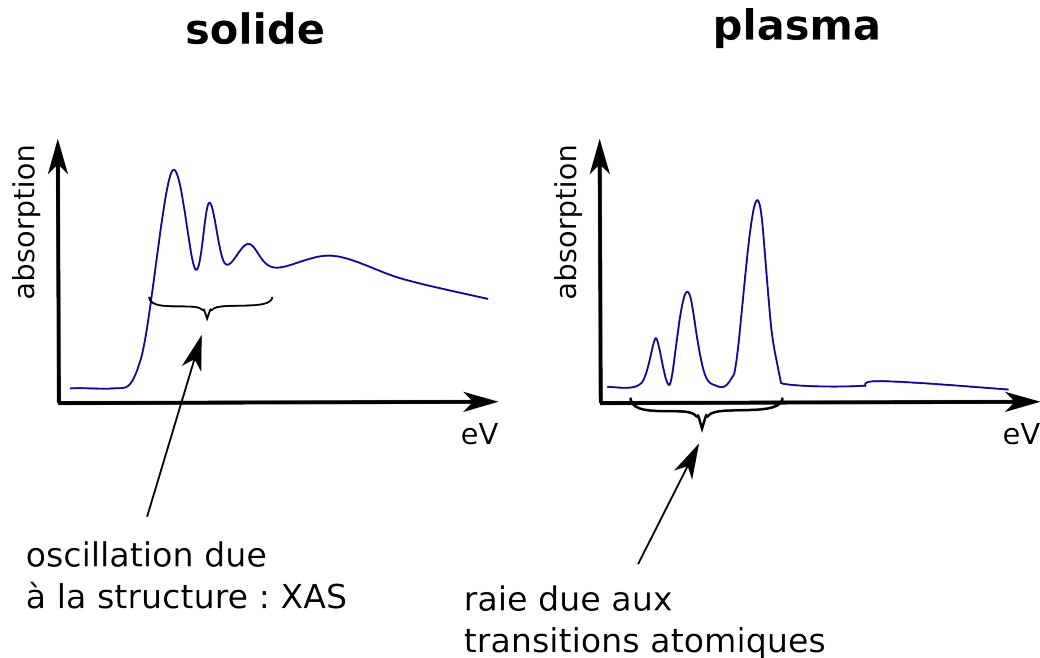


Figure 1.6 – Deux phénomènes d'absorption : une structure fine (XAS) autours des seuils, et les transitions entre deux niveaux atomiques.

En étudiant ces oscillations, on remonte aux propriétés de la matière, comme les distances inter-atomiques, ou le nombre d'électrons dans les bandes de valence ou de conduction. Pour le plasma, la figure d'absorption représente les raies dues aux transitions des niveaux atomiques (voir figure 1.3). Celles-ci sont aussi modifiées en fonction de l'environnement,

c'est-à-dire de la densité ou de la température (paragraphe 2.2.1). On est donc capable de mesurer les propriétés spectrales de plasmas denses.

De manière générale, les coefficients d'absorption dépendent des probabilités de transition quantique d'un électron entre deux niveaux. Ces derniers subissent l'influence du milieu environnant.

1.4 Méthodologie

Pour mener à bien une expérience de spectroscopie d'absorption permettant l'analyse des coefficients d'absorption, il faut obtenir tous les points suivants :

- i. Caractériser la source de rayonnement : I_0 ,
- ii. Caractériser le milieu sondé : $\mu(\rho, T)$,
- iii. Mesurer le rayonnement transmis : I ,
- iv. Comparer l'absorption avec la théorie.

(i) Caractériser la source de rayonnement X incidente permet d'obtenir un signal de référence maîtrisé. Ceci est très important pour extraire le coefficient d'absorption du milieu sondé (équation 1.1). La source doit avoir une large gamme spectrale, émettre un nombre de photons suffisant, et avoir une durée la plus courte possible afin de limiter les gradients temporels dus à l'évolution de l'absorption de l'échantillon.

(ii) Caractériser le milieu sondé est indispensable. En effet, le coefficient d'absorption dépend fortement des caractéristiques du milieu, comme la densité et la température. Dans le cas d'un plasma, connaître la densité et la température de l'échantillon permet de comparer les spectres d'absorption avec les modèles numériques.

Dans le cas d'un solide de VO_2 , la caractérisation est différente. On connaît déjà ces propriétés à l'état initial et à l'état final par d'autres types de mesure. L'étude des coefficients d'absorption permet de mesurer indirectement le changement de ces propriétés.

(iii) Mesurer le rayonnement transmis dans différentes conditions. On fait varier le délai entre la pompe et la sonde X pour mesurer des absorptions à différents instants. Dans le cas d'un plasma, on varie aussi l'intensité de faisceau de la pompe pour obtenir un plasma ayant des conditions initiales différentes, ce qui va modifier sa dynamique.

(iv) **Comparer avec la théorie** les résultats des coefficients d'absorption permet de valider les modèles numériques utilisés. Ceux-ci dépendent des équations physiques associées à la matière et à la dynamique que l'on observe.

1.5 Organisation du manuscrit

Le chapitre 2 présente quelques généralités sur l'absorption du rayonnement par la matière : tout d'abord les différents mécanismes d'absorption d'un atome seul, puis la différence entre un atome léger ($Z \lesssim 20$), et un atome lourd ($Z \gtrsim 20$). Enfin, ce chapitre l'influence du milieu sur la structure d'absorption. Comme mentionné ci-dessus, le milieu modifie les raies d'absorption ou les structures autour des seuils d'absorption.

Le chapitre 3 présente les moyens expérimentaux et numériques mis à disposition pour réaliser cette étude. Du côté expérimental, il décrit les systèmes lasers employés, les spectromètres utilisés en fonction des gammes d'énergie étudiées, les détecteurs, et le diagnostic d'interférométrie FDI (acronyme de *Frequency Domain Interferometry*) permettant de mesurer indirectement les propriétés d'un plasma en régime transitoire, comme la densité et la température.

Du côté numérique, ce chapitre présente les différents types de simulations utilisées, comme outil d'analyse des résultats d'absorption de rayonnement X, et comme outils de caractérisation d'un plasma.

Le chapitre 4 présente une expérience d'absorption de rayonnement X, réalisée au LULI, permettant de sonder un plasma dans le régime de la *Warm Dense Matter*. Dans ce régime, le plasma est corrélé et relativement froid, la densité est proche de celle du solide et la température de quelques dizaines d'électrons-Volt. Le plasma, produit par interaction laser-matière, est dans un état transitoire. L'absorption mesurée est ensuite comparée à un modèle numérique.

Ce chapitre décrit également la méthode expérimentale permettant de caractériser ce plasma, de manière indépendante du spectre d'absorption de rayonnement X, ainsi que les résultats obtenus en termes d'opacité spectrale.

Le chapitre 5 présente également une expérience de spectroscopie d'absorption de rayonnement X, réalisée à l'INRS, permettant de sonder un échantillon de dioxyde de vanadium

(VO₂). Le VO₂, chauffé par une impulsion laser, présente une transition de phase solide-solide ultra-rapide. En effet, l'étude de l'absorption de rayonnement X en fonction du temps permet de remonter aux mécanismes moteurs de la transition.

Ce chapitre commence par décrire la caractérisation d'un système expérimental ayant les paramètres adaptés pour observer le changement d'absorption de rayonnement X lors de sa transition. Il termine par décrire quelques résultats obtenus sur le VO₂ en statique, puis en dynamique.

Le chapitre 6 présente les conclusions et les perspectives au-delà de ce travail.

Généralités sur l'absorption du rayonnement

DURANT ma thèse, j'ai étudié l'absorption de rayonnements X dans deux milieux, plasma et solide. L'absorption permet de sonder la matière dense, très peu émissive, et de quantifier les propriétés de cette matière. Je présente quelques généralités, en commençant par décrire les principaux mécanismes de l'absorption d'un photon par la matière, comme un atome isolé ou un électron. Ensuite, j'explique différents effets dus à la présence du milieu environnant l'atome absorbeur. En effet, le milieu va influencer aussi bien sur les formes spectrales des raies d'absorption que sur les seuils d'absorption.

2.1 Absorption d'un photon

La matière absorbe de la lumière, les photons. Cette absorption s'effectue de plusieurs façons, qui correspondent toutes à un changement d'état de l'électron absorbant¹. D'après la physique quantique, l'absorption d'un photon est possible si la probabilité d'absorption n'est pas nulle, c'est-à-dire si l'état final de l'électron existe.

Il est à noter qu'il existe les mécanismes inverses de ceux présentés dans la suite de ce chapitre. Ils correspondent à l'émission du rayonnement. Pour donner une idée générale des différents mécanismes d'émission (et donc d'absorption), comme leurs intensités ou positions relatives, la figure 2.1 présente un spectre calculé pour un plasma d'aluminium, de densité $0,1 \text{ g/cm}^3$, chauffé à 300 eV.

¹Il est aussi possible que le noyau absorbe des photons, mais des photons très énergétiques. Cela sort du cadre de cette thèse.

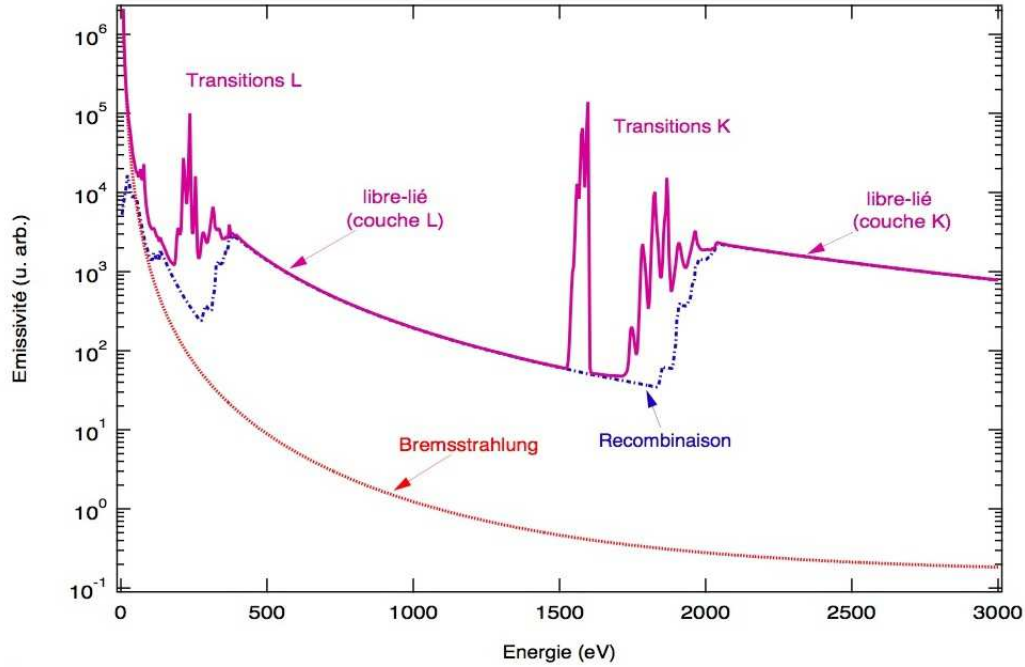


Figure 2.1 – Spectre type d’émission de rayonnement X d’un plasma d’aluminium (300 eV - 0,1 g/cm³), séparant les différentes contributions. Tous les mécanismes représentés ont leur équivalence en absorption.

2.1.1 Transition lié-lié

Les transitions lié-lié correspondent à l’absorption d’un photon par un électron qui transite entre deux niveaux d’énergie de l’atome absorbeur. L’équation 2.1 présente le mécanisme de l’absorption lié-lié : un atome ou un ion dans un état A , absorbe un photon d’énergie $h\nu$, et devient dans un état excité A^* :



La probabilité d’absorption suit les règles de transition données par la physique quantique. On appelle couche K, l’ensemble des transitions entre les niveaux $n=1$ vers $n=2,3,4$, etc. La couche L correspond aux transitions entre les niveaux $n=2$ vers $n=3,4$, etc, et ainsi de suite pour les couches M, N, O.

Le spectre absorbé va dépendre du nombre de transitions concernées, et ce nombre augmente rapidement lorsque n augmente. Un spectre de couche K est composé de raies isolées, car le nombre de transitions possibles est limité. Par contre, les spectres de couche L comprennent de nombreuses raies, et ceux de couche M comprennent tellement de transitions qu’elles se

superposent et forment un spectre quasi continu. De plus, l'allure des spectres d'absorption (ou d'émission) diffère en fonction du numéro atomique.

L'intensité des raies d'absorption est proportionnelle aux nombres d'émetteurs et à la probabilité de transition :

$$I \propto N_{j,q} A_{ji} h\nu \quad (2.2)$$

où $N_{j,q}$ est la population du niveau j , de l'ion de charge q d'où part l'électron, A_{ji} est la probabilité de la transition entre les niveaux j et i , et $h\nu$ est l'énergie du photon émis, égale à la différence d'énergie entre les niveaux concernés par la transition.

Élément léger ($Z \lesssim 20$)

Le spectre de raie d'absorption pour un plasma de numéro atomique Z faible est la somme de toutes les transitions possibles. Il est possible de calculer individuellement toutes les transitions autorisées pour différents états ioniques. La figure 2.2-a représente schématiquement le nombre de transitions à calculer pour un élément léger.

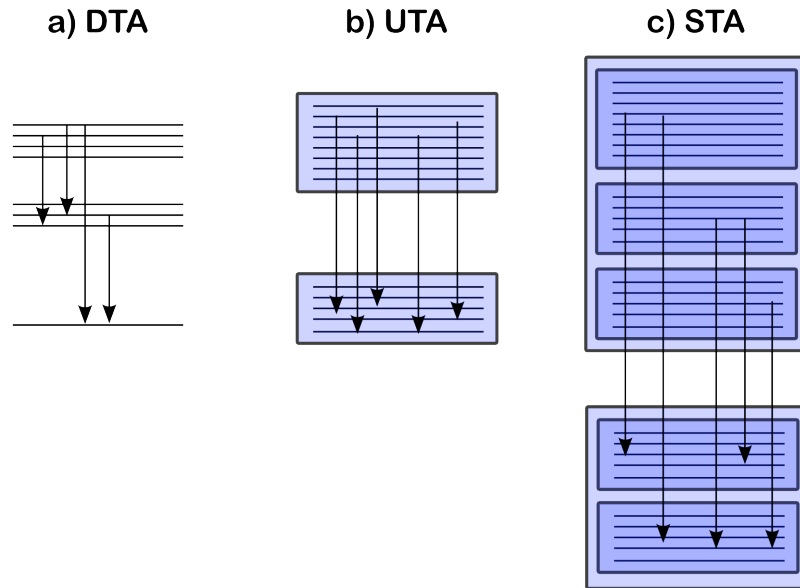


Figure 2.2 – Niveaux d'énergie à calculer pour différents éléments. a) Pour les éléments légers, on calcule toutes les transitions connues. b) Pour les éléments mi-lourds on regroupe en configuration (UTA) les niveaux qui sont, entre eux, proches de l'ETL. c) Pour les éléments lourds, on regroupe les configurations (proche de l'ETL en elles) en super-configuration (STA).

Éléments mi-lourds ($20 \lesssim Z \lesssim 40$)

Pour un plasma de numéro atomique Z moyen, le nombre de transition augmente. Pour des plasmas d'éléments mi-lourds, il est difficile d'effectuer un calcul détaillé, tant le nombre de niveaux devient considérable. On peut alors décider d'appliquer la notion d'équilibre thermodynamique local (ETL) à des niveaux proches en énergie, en comparaison à $k_B T$, et supposer groupés dans une même configuration les niveaux qui sont en ETL partiel. Ces configurations sont appelées UTA, pour *Unresolved Transition Array* (Bauche-Arnoult et al., 1979).

L'ensemble des transitions radiatives (schématisées figure 2.2-b) connectant deux configurations est représenté sous la forme d'une gaussienne, caractérisée par son énergie moyenne et une variance.

Éléments lourds ($Z \gtrsim 40$)

Pour des éléments lourds, où les ions sont peu chargés, le nombre de niveaux est encore plus grand et même le regroupement de ceux-ci en configurations devient prohibitif (plusieurs centaines de milliers de configurations à prendre en compte). Il convient alors de faire un regroupement raisonnable pour réduire le nombre de niveaux mais aussi pour accéder à une évaluation rapide des énergies et des taux connectant ces « super-niveaux ». La méthode alors employée est la théorie des super-configurations (ou supra-configurations), introduite dans un contexte ETL par Bar-Shalom et al. (Bar-Shalom et al., 1989) puis étendue à l'HETL² (Bar-Shalom et al., 1997; Peyrusse, 1999).

Une super-configuration est définie en regroupant des sous-couches voisines en énergie, en supra-couche. La figure 2.2-c schématise le principe des super-configurations. Une super-configuration regroupe plusieurs configurations détaillées ayant chacune une largeur de distribution en énergie. L'évaluation des taux reliant les super-configurations entre elles revient à faire une statistique sur les sauts (collisionnels et radiatifs) électroniques $n_l \rightarrow n_l'$ possibles entre super-configurations définies au préalable. Pour les sauts purement radiatifs, on attribue une énergie moyenne et une variance spectrale à chacun d'eux. Une des hypothèses de la méthode consiste à supposer que les supra-couches sont statistiquement indépendantes les unes des autres. Ainsi, toute la puissance de la méthode des super-configurations est liée à la conjonction d'un regroupement astucieux de niveaux avec l'aide d'une méthode statistique permettant d'attribuer une signature spectrale réaliste aux transitions radiatives entre ces super-configurations (et à l'intérieur de celles-ci).

²HETL : Hors Équilibre Thermodynamique Local

2.1.2 Transition lié-libre

Les transitions lié-libre correspondent à l'absorption d'un photon par un électron lié à l'atome et sa transition vers un état libre. Ceci correspond à l'ionisation, l'électron étant arraché de l'atome.



Pour que cette transition soit possible, il est nécessaire que le photon fournisse assez d'énergie pour ioniser l'atome. Ce qui veut dire qu'à partir d'un certain seuil, il va y avoir un saut assez net dans l'absorption. On parle de seuil K (respectivement L, M) si l'énergie correspond à l'énergie d'ionisation de la couche $n=1$ (2, 3).

Calcul de la transmission à partir des tables de Henke

Dans la suite de ce mémoire (chapitres 4 et 5), certaines mesures de transmission sont comparées à celles calculées à partir des tables de Henke et al. (1993).

Sur le site du *Center for X-ray Optics*³, l'université de Berkeley mets à disposition un outil permettant de calculer les transmissions. Celui-ci est basé sur les transitions lié-libre d'un atome froid. La transmission T d'une tranche de matière d'épaisseur d est donnée par :

$$T = \exp(-n\mu_a d) \quad (2.4)$$

$$\mu_a = 2r_0\lambda f_2 \quad (2.5)$$

où μ_a est la section efficace de photoabsorption, r_0 le rayon classique de l'électron, λ la longueur d'onde et n le nombre d'atomes par unité de volume.

Les coefficients de diffusion atomique f_2 sont basés sur des mesures de photoabsorption d'éléments dans leurs états fondamentaux. L'hypothèse de base est que la matière condensée peut être modélisée comme un groupement d'atomes n'interagissant pas entre eux. Cette hypothèse est en général valide pour des énergies suffisamment éloignées des seuils d'absorption. Dans les régions proches des seuils, l'état chimique spécifique est important et des mesures directes doivent être faites. Il faut aussi noter que la section efficace de diffusion Compton⁴ (Hubbell et al., 1975) est incluse dans le calcul des transmissions. La section efficace Compton est significative pour des éléments légers ($Z < 10$) à de hautes énergies (10 keV à 30 keV).

³<http://www-cxro.lbl.gov/>

⁴La diffusion Compton est la diffusion d'un photon sur une particule de matière, par exemple un électron.

2.1.3 Transition libre-libre

Les transitions libre-libre correspondent à l'absorption d'un photon par un électron libre lors d'une interaction coulombienne avec un atome. L'électron devient plus énergétique, il est accéléré. Ce type d'absorption correspond à un spectre continu.

$$e^- + h\nu \rightleftharpoons (e^-)^* \quad (2.6)$$

Le phénomène inverse est appelé rayonnement de freinage ou « Bremsstrahlung ». Lors d'une interaction coulombienne entre un électron et une autre particule chargée, l'électron décéléré émet du rayonnement.

2.2 Influence du milieu

Dans cette section, trois mécanismes modifiant la structure d'absorption sont décrits. Ces modifications sont dues à la présence de la matière environnant l'atome absorbeur. En effet, la forme spectrale des raies d'absorption (ou d'émission), la position des seuils d'absorption aussi bien que leurs structures fines sont influencés par les effets de densité.

2.2.1 Spectres de raies

Une raie d'émission ou d'absorption peut être caractérisée par sa largeur à mi-hauteur. Cette largeur est une combinaison de plusieurs effets : l'élargissement naturel identique quel que soit le milieu, l'élargissement Doppler sensible à la température, et l'élargissement par impact électronique sensible aux effets de densité.

Élargissement naturel

Il s'agit d'un élargissement homogène lié à la durée de vie finie des états excités. Le profil correspondant est une lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu_{naturel}$ est donnée par :

$$\Delta\nu_{naturel} = \frac{1}{A_{ij}} \quad (2.7)$$

où A_{ij} est la probabilité de transition.

Cette largeur est en général très faible, mais si le niveau émetteur est auto-ionisant, c'est-à-dire au-dessus de la limite d'ionisation, elle peut devenir plus importante, le niveau étant peu stable. Cet élargissement reste en général négligeable devant les autres processus.

Élargissement Doppler

La forme de raie liée à l'effet Doppler correspond à un élargissement inhomogène. Dans un plasma, lorsqu'un ion émetteur se déplace parallèlement à l'axe d'observation, la fréquence de son rayonnement sera décalée par effet Doppler. Si l'on suppose que ce même ion se meut dans le plasma en fonction de l'agitation thermique, le profil de raie correspond alors à une gaussienne. La largeur à $1/e$ de cette gaussienne s'écrit :

$$\frac{\Delta\nu_{Doppler}}{\nu} = \frac{1}{c} \sqrt{\frac{2kT_i}{M}} \quad (2.8)$$

où M est la masse de l'ion, T_i la température ionique. Lorsque la densité n'est pas trop élevée, l'élargissement Doppler est dominant.

Élargissement par impact électronique

Les micro-champs électriques régnant dans le plasma du fait des mouvements des électrons et des ions influencent les niveaux atomiques. De même qu'un champ magnétique provoque une levée de dégénérescence des niveaux de nombres magnétiques différents, la présence d'un champ électrique lève la dégénérescence des niveaux de nombres quantiques cinétiques différents, connu sous le nom d'effet Stark. Le profil Stark est composé d'une superposition de lorentziennes, correspondant aux niveaux dont la dégénérescence a été levée. Les raies émises par des niveaux de nombre quantique supérieur pair ont en général une composante centrale, alors que les raies correspondant à un nombre quantique supérieur impair présentent un creux au centre. Les ailes de raies sont créées par le micro-champ ionique. On le calcule dans une approximation quasi-statique, car les ions sont lourds et bougent peu. On peut tenir compte de la dynamique ionique, mais elle modifie peu les profils. Le centre de chaque composante ionique est élargi par un champ à haute fréquence, dû aux collisions électroniques.

La largeur Stark d'une raie est importante pour les éléments de Z faible, et augmente avec le nombre quantique. Elle varie beaucoup avec la densité électronique, et sa mesure constitue un diagnostic de densité. Pour une raie de résonance d'un ion hydrogénoïde, dans l'approximation quasi-statique, la largeur varie comme :

$$\Delta\nu_{Stark} \sim \frac{n(n-1)}{Z} n_e^{1/3} \quad (2.9)$$

où n est le nombre quantique principal du niveau supérieur, Z est la charge de l'ion émetteur et n_e est la densité électronique.

Dans une mesure expérimentale, la composante centrale ne pourra pas être résolue, car elle est bien plus fine que la résolution instrumentale des spectrographes X, et l'on verra essentiellement une seule composante, dont on pourra mesurer la largeur.

2.2.2 Décalage du seuil d'absorption

L'environnement d'un atome absorbeur peut modifier la position de ses seuils d'absorption, comme l'abaissement de potentiel, pouvant conduire à l'ionisation par la pression.

Abaissement de potentiel

Pour les nombres quantiques principaux élevés, proches du seuil d'ionisation, l'espacement entre les différents niveaux d'énergie tend à devenir plus faible, et à dépendre uniquement du nombre quantique principal n . L'évolution des différents niveaux d'énergie devient alors identique à celle d'un atome hydrogénoïde et peut être exprimée par une série de Ritz-Rydberg (Herzberg, 1965) :

$$E_n = E_i - \frac{R_y}{\left(n + A + \frac{B}{n^2}\right)^2} \quad (2.10)$$

où A et B sont des variables ajustables selon l'espèce atomique, et R_y la constante de Rydberg. Le poids statistique de ces niveaux supplémentaires est donné par la relation : $g_n = 2n^2 g_i$, où $2n^2$ représente le poids statistique des niveaux d'énergie d'un atome d'hydrogène, et g_i représente le poids statistique du « cœur » de l'atome qui est équivalent au poids statistique du niveau fondamental de l'ion créé lors de l'ionisation de l'espèce considérée (Andre & Lefort, 1998).

On obtient alors un nombre infini de niveaux d'énergie (puisque la série de Rydberg converge vers l'énergie d'ionisation de l'atome). Ceci est irréaliste, et il faut alors prendre en compte l'abaissement du potentiel d'ionisation de l'atome dû à l'interaction avec les particules chargées environnantes (Delcroix & Bers, 1994). L'abaissement ΔE de l'énergie d'ionisation de l'espèce atomique étudiée se calcule dans une première approche (espèces neutres et ions

immobiles) en fonction de la densité électronique n_e et de la température T du gaz environnant :

$$\Delta E_i = \frac{1}{4\pi} q_e^3 \sqrt{\frac{n_e}{\varepsilon_0 k_B T}} \quad (2.11)$$

Cet abaissement de potentiel peut conduire à l'ionisation par la pression. C'est-à-dire que l'atome sera ionisé dès que le nombre quantique n_{max} sera atteint : $E_{n_{max}+1} > E_i - \Delta E_i$.

Ionisation par pression

Dans les plasmas de forte densité (c'est-à-dire dans lesquels la pression électronique est élevée), une augmentation brutale du degré d'ionisation peut se produire. Cet effet est appelée « ionisation par pression » (Blenski & Ishikawa, 1995). Dans le modèle de l'atome confiné, l'ionisation par pression s'exprime par le fait que le potentiel, ayant une portée finie, est caractérisé par un nombre fini d'états liés (Bargmann, 1952). Ainsi, l'ionisation par pression se traduit par la disparition d'un état propre. Le mécanisme de cette ionisation diffère de l'ionisation « usuelle » due à la température. À forte densité, les interactions coulombiennes des électrons liés des sous-couches externes des atomes ou des ions avec les particules libres environnantes (électrons ou ions) ou les particules libres polarisables (atomes ou clusters) occasionnent une diminution de leur énergie de liaison. Qualitativement, une interprétation possible consiste à dire qu'une sous-couche est ionisée par pression lorsque l'abaissement d'énergie du continuum, dû à l'interaction avec le plasma environnant, devient égal à son énergie de liaison.

Une autre manière d'interpréter ce phénomène qualitativement est de dire qu'un électron cesse d'être lié lorsque le « champ des plus proches voisins » de Holtzmark (Burgess & Lee, 1982) devient égal à l'énergie d'attraction du noyau de l'état en question. En fait, lorsque la densité ionique est suffisamment élevée, les fonctions d'onde des électrons liés commencent à « sortir » de la sphère. En d'autres termes, la densité d'électrons liés n'est pas nulle à la frontière de la cellule ionique.

2.2.3 Phénomène autour des seuils : XAS (EXAFS & XANES)

Quand le rayonnement X correspond à l'énergie de transition d'un électron depuis un niveau du coeur de l'atome vers un niveau du continuum, on observe un seuil d'absorption, l'électron étant éjecté. Suivant l'orbitale qu'occupait l'électron, on parlera de seuil K, L,... (voir paragraphe 2.1.1).

Comme ces énergies sont spécifiques à une espèce atomique donnée, la mesure est sélective, et on pourra spécifiquement mesurer l'environnement d'un atome de silicium ou d'oxygène,

etc. L'électron éjecté est alors diffusé par l'environnement de l'atome absorbeur, c'est pourquoi l'absorption des rayonnements X est en quelque sorte une expérience de diffusion des électrons. Le photoélectron est rétrodiffusé par les atomes voisins et revient interférer avec l'onde diffusée. Cette interférence crée une modulation des sections efficaces d'absorption et de diffusion, et forme une structure autour des seuils d'absorption appelé XAS pour *X-ray Absorption Structure*.

Autrement dit, ces oscillations proviennent du phénomène suivant : de par la dualité onde-particule, le photoélectron sortant de l'atome excité peut être vu comme une onde sphérique qui rencontre les atomes environnants et s'y réfléchit. On obtient ainsi des ondes réfléchies qui créent des phénomènes d'interférences constructives ou destructives avec l'onde incidente, et qui vont faire varier la quantité résultante du photoélectron. On va donc avoir des variations de l'absorption pour certaines longueurs d'onde du photoélectron.

Un exemple de ces oscillations de la structure est représenté schématiquement sur la figure 2.3. Le spectre d'absorption se décompose en plusieurs zones, avant et après le seuil d'absorption, en fonction de l'énergie de l'électron éjecté : tout d'abord le XANES (*X-ray Absorption Near Edge Structure*, de -10 à +50 eV autour du seuil), qui contient une information sur la structure électronique, l'état de valence de l'atome considéré et l'influence des atomes voisins sur sa structure électronique. Plus loin (de 50 à 1000 eV après le seuil) se trouve l'EXAFS (*Extended X-Ray Absorption Fine Structure*), qui permet de déterminer la distance, la nature et le nombre des atomes, premiers ou seconds voisins.

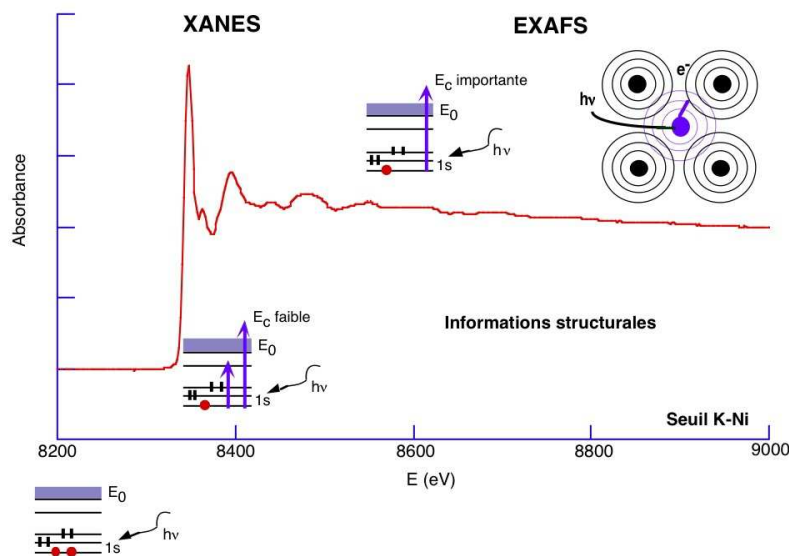


Figure 2.3 – Schéma présentant les structures d'absorption du rayonnement X proche des seuils (XAS). On peut séparer cette structure en deux parties. La première, le XANES est comprise entre -10 et 50 eV après le seuil, la seconde, l'EXAFS se trouve au delà.

La différence d'énergie entre le XANES et l'EXAFS peut être aussi expliquée de manière assez simple en comparant la longueur d'onde des photoélectrons et la distance interatomique entre l'atome absorbeur et ses voisins. L'énergie cinétique d'un photoélectron est reliée à la longueur d'onde λ par la relation suivante :

$$E_{\text{cinétique}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} = \frac{(2\pi\hbar)^2}{2m_e \lambda^2} \quad (2.12)$$

Cela signifie que pour les grandes énergies $E_{\text{cinétique}}$, la longueur d'onde λ est plus petite que les distances interatomiques, la région EXAFS correspond au régime de diffusion simple. Tandis que pour de faibles énergies, la longueur d'onde est plus grande que les distances interatomiques, la région XANES est associée au régime de diffusion multiple.

XANES

Une interprétation complète de la partie XANES est assez complexe et demande notamment des travaux de simulation tenant compte des voisins et de la structure électronique des atomes considérés. Il n'y a pas d'analyse « directe » de l'ensemble du spectre XANES, contrairement à la partie EXAFS. Précisons que le XANES, mesurable à une fraction d'électron-Volt près, dépend de la symétrie du champ électrique local autour de l'atome central. Le pic de pré-seuil correspond à la transition vers les premiers niveaux vides ou partiellement remplis, transitions autorisées ou non selon la symétrie ; l'intensité d'une transition peut être considérée comme une bonne signature de la symétrie autour de l'atome absorbeur. Ces transitions peuvent aussi faire apparaître un pic au maximum du seuil d'absorption, la raie blanche.

EXAFS

Pour le signal EXAFS, il est possible de faire une analyse relativement directe du signal d'absorption mesuré : après extraction des oscillations EXAFS du spectre d'absorption, et normalisation par la hauteur du seuil d'absorption, le signal obtenu, appelé χ , peut être analysé en utilisant la relation⁵ :

$$k\chi(k) = -S_0^2 \sum_i \frac{N_i}{R_i^2} e^{-2\sigma_i^2 k^2} e^{\frac{-2R_i}{\lambda(k)}} |f_i(\pi, k)| \sin(2kR_i + 2\delta_i(k) + \varphi_i(k)) \quad (2.13)$$

⁵Pour une revue de l'EXAFS, on peut se reporter à l'article de Lee *et al.* (Lee *et al.*, 1981).

où :

- k est le nombre d'onde du photoélectron, proportionnel à la racine carrée de son énergie cinétique, donc à la racine carrée de la différence entre l'énergie du rayonnement considéré et l'énergie du seuil (énergie de liaison) : $k \propto \sqrt{E - E_{seuil}}$
- S_0^2 est un terme de réduction dû à des effets multiélectroniques, σ_i^2 est le facteur thermique qui contribue à l'amortissement du signal. $\lambda(k)$ est le libre parcours moyen du photoélectron, qui vaut quelques angstroms
- $\delta_i(k)$ et $\varphi_i(k)$ sont des termes de déphasage, respectivement pour la rétrodiffusion et l'éjection du photoélectron.
- N_i est le nombre de rétrodiffuseurs situés à une distance R_i , et dont l'amplitude de rétrodiffusion est $f_i(\pi, k)$.

De façon extrêmement simplifiée, on peut dire que le signal EXAFS est la transformée de Fourier du nombre de voisins à la distance R_i de l'atome absorbeur, avec des termes d'amortissement et de déphasage. En partant de valeurs théoriques ou expérimentales pour les facteurs de rétrodiffusion et de déphasage, il est possible de déterminer la distribution radiale atomique autour de l'atome absorbeur.

2.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu les principaux mécanismes d'absorption du rayonnement X, tout d'abord dans le cas d'un atome isolé, puis sous l'influence du milieu environnant sur l'atome absorbeur. Cette dernière induit différents effets, comme la modification du profil spectral des raies d'absorption, ou bien ajoute une structure fine autour des seuils d'absorption. En mesurant ces effets, il est possible de déduire les propriétés de la matière absorbante.

Moyens expérimentaux et numériques

DANS ce chapitre, je présente les différents moyens expérimentaux et numériques utilisés au cours de ce travail. La figure 3.1 représente schématiquement les différents outils qui m'ont permis de réaliser deux expériences de spectroscopie d'absorption de rayonnement X ultra-rapide au moyen de sources produites par laser dans deux milieux différents : plasma et solide. Les outils sont les systèmes lasers, les spectromètres, les détecteurs, le diagnostic FDI (pour *Frequency Domain Interferometry*). Il est possible de les classer de plusieurs façons. Tout d'abord, il y a les moyens communs aux deux expériences : les systèmes lasers, les spectromètres et les détecteurs, et les moyens spécifiques : le diagnostic FDI et les simulations n'ont été utilisés que pour les expériences d'absorption d'un plasma (chapitre 4). En effet, ceux-ci permettent d'évaluer les paramètres thermodynamiques du plasma sondé et de comparer les résultats théoriques aux résultats expérimentaux. Ensuite, il est aussi possible de les séparer en deux catégories, les moyens expérimentaux et les moyens numériques.

Moyens expérimentaux

Les moyens expérimentaux utilisés sont similaires pour les deux objectifs (section 1.2), mais ils présentent des particularités pour être adaptées au sujet étudié. Le système expérimental est composé d'un système laser, afin de produire la source de rayonnement X et d'initier la dynamique à observer (plasma transitoire ou transition de phase), de spectromètres adaptés aux gammes d'énergie étudiées, de détecteur de rayonnement X. À cela s'ajoute un diagnostic plasma, permettant de déterminer les paramètres hydrodynamiques du plasma sondé comme la densité et la température.

Ces différents éléments seront présentés en les remettant dans le contexte expérimental des deux expériences décrites aux chapitres 4 et 5.

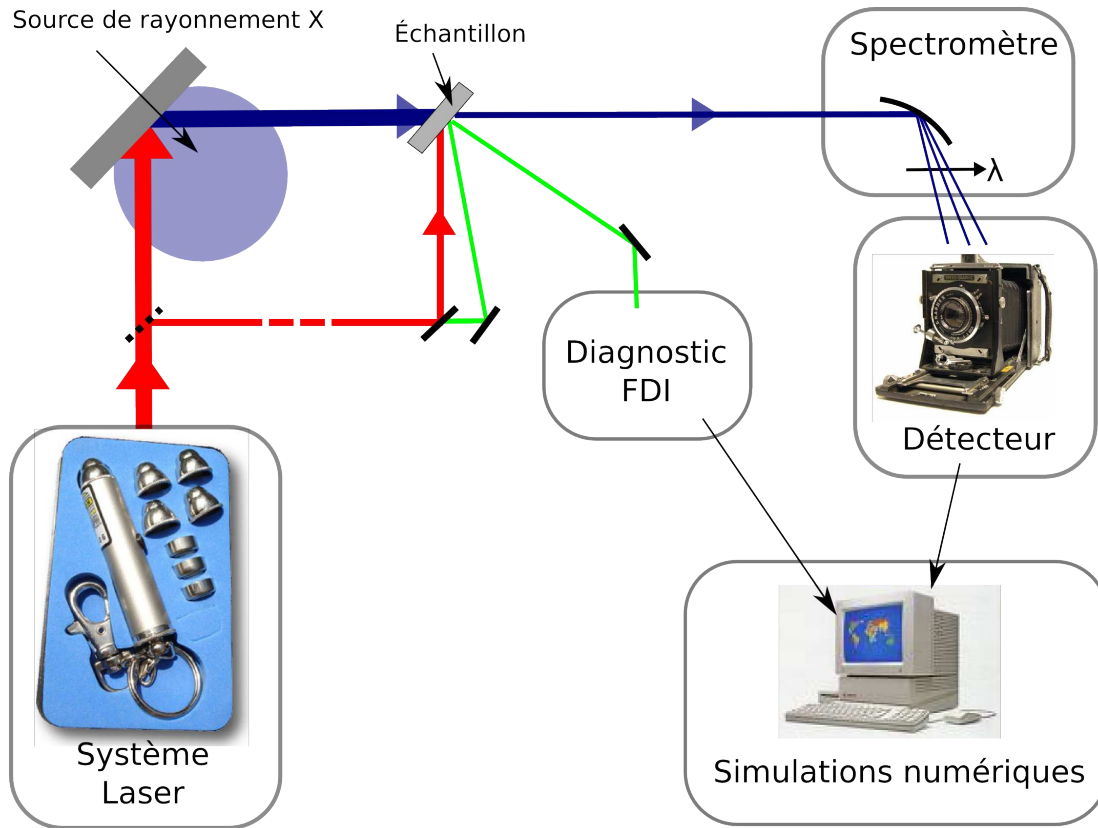


Figure 3.1 – Schéma représentant les différents moyens expérimentaux et numériques utilisés dans ce travail.

Moyens numériques

Ce chapitre présente également différents codes numériques, adaptés à la physique des plasmas produits par interaction laser matière. Ils sont de deux sortes. Un code hydrodynamique, MULTI-FS, et deux codes de physique atomique, TRANSPEC et OPA-S. Le premier calcule l'évolution des paramètres thermodynamiques d'un plasma en fonction du temps, lorsqu'une impulsion laser ultra-courte interagit avec un plasma. Les seconds calculent précisément l'émission du rayonnement d'un plasma ayant des paramètres thermodynamiques donnés. Il est possible de coupler ces deux types de simulation pour obtenir l'évolution du rayonnement d'un plasma en fonction du temps.

Ces différents codes numériques ont différentes applications, que l'on peut classer en deux autres catégories. La première catégorie regroupe les codes où la physique est relativement bien connue, et les simulations permettent de caractériser un plasma (MULTI-FS et TRANSPEC). Par contre, lorsque les phénomènes physiques sont mal connus, on utilise des codes prenant en compte différentes approximations, et les expériences permettent de tester les modèles dans diverses conditions, pour que ces derniers puissent passer dans la première catégorie (caractérisation d'un plasma).

3.1 Lasers

Deux types de laser ont été utilisé durant ce travail, correspondant aux deux expériences décrites au chapitre 4 et au chapitre 5. Leurs principales différences sont la cadence de tir, la durée d'impulsion, et l'énergie disponible. Au LULI, le laser délivre une énergie de 30 J sur 300 fs (un tir toutes les 20 minutes) . À l'INRS, les lasers sont cadencés à 10 ou 100 Hz avec des énergies allant de 100 à 600 mJ sur 30-60 fs. Ils sont basés sur la technique d'amplification « CPA ».

3.1.1 Principe d'un laser CPA

Pour obtenir de forts éclaircissements sur cible, la technique d'amplification par dérive de fréquence CPA (pour l'acronyme anglais *Chirp Pulse Amplification*) a été développée (Strickland & Mourou, 1985). Elle permet d'amplifier des impulsions sub-picoseconde et d'atteindre des éclaircissements supérieurs à 10^{17} W/cm². En effet, une impulsion ultra-brève ne peut pas être amplifiée vu le temps de réponse du milieu amplificateur et son seuil d'endommagement. Aussi, la technique consiste à étirer temporellement l'impulsion pour l'amplifier, puis de la recomprimer.

La figure 3.2 représente schématiquement le principe de la technique d'amplification. Une impulsion de très courte durée ($< \text{ps}$) et de faible énergie ($\sim \text{mJ}$) est étirée temporellement ($\sim \text{ns}$). Elle est ensuite amplifiée, en restant en dessous du seuil d'endommagement des milieux optiques traversés, à des énergies supérieures au Joule. Finalement, l'impulsion est comprimée, puis propagée jusque dans l'enceinte d'interaction. Ces deux dernières étapes sont effectuées dans des chambres sous vide. En effet, la densité d'énergie de l'impulsion recomprimée est au-dessus du seuil de claquage de l'air.

On peut décrire une impulsion lumineuse par son champ électrique $E(t)$. La transformé de Fourier de ce champ électrique nous donne le spectre de cette impulsion $E(\omega)$. Ainsi la durée de l'impulsion Δt et la largeur de son spectre $\Delta \omega$ sont duales l'une de l'autre et on montre qu'il y a entre elles la relation universelle :

$$\Delta t \cdot \Delta \omega \geq \frac{1}{2} \quad (3.1)$$

Une conséquence importante de cette relation est tout simplement que plus on voudra des durées d'impulsions courtes plus la largeur spectrale de ces impulsions devra être large. On reconnaîtra là une propriété décrite par les relations d'incertitude d'Heisenberg.

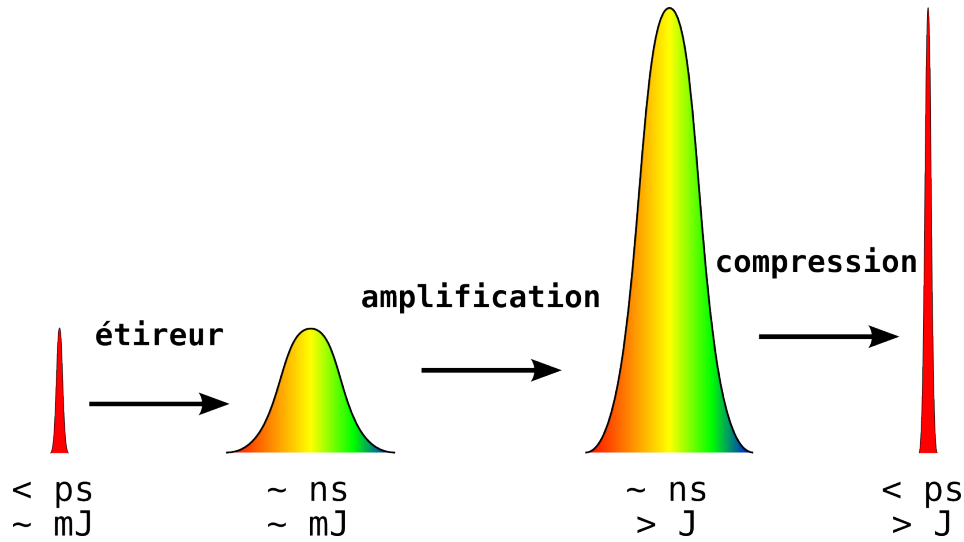


Figure 3.2 – Principe d’amplification d’une impulsion laser en utilisant la technique CPA.

3.1.2 Le laser 100 TW du LULI

L’installation 100 TW fonctionne depuis 1997. Comme son nom l’indique, elle est capable de délivrer une impulsion dont la puissance crête est égale à 100 TW.

Ce système, basé sur une technologie néodyme-verre ($\omega = 1,06 \mu\text{m}$), permet de disposer dans l’enceinte d’interaction de 4 faisceaux laser optiquement synchronisables, avec éventuellement un déphasage de fréquence :

- (a) 25-30 J en 320 fs à ω (10 J à 2ω) en sortie d’un compresseur sous vide ayant un contraste en intensité de $\sim 10^{-7}$ à 0,5 ns,
- (b) 50 J étiré et non comprimé à ω (20 J à 2ω),
- (c) < 10 J en 400 fs à ω en sortie d’un compresseur à l’air,
- (d) un faisceau sonde de diamètre 16 mm, et 100 mJ d’énergie à ω (convertible à 2ω , ou à 4ω) de durée ajustable entre 320 fs et quelques dizaines de ps.

La chaîne est composée (i) d’un pilote Ti-Saphir comprenant une source émettant à la longueur d’onde de 1057 nm (ω) une impulsion d’énergie nJ de durée 100 fs, (ii) d’un étireur temporel de type « Öffner » - pour atteindre des durées de 1,2 ns - (iii) d’un étage pré-amplificateur régénératif afin d’atteindre une énergie de l’ordre du mJ, (iv) d’une chaîne d’amplification à verres dopés au néodyme, et (v) d’une salle d’expérience contenant une enceinte d’interaction, un compresseur sous vide et un compresseur à l’air. La figure 3.3 présente une photographie du compresseur sous vide et de l’enceinte d’interaction.

La chaîne d’amplification de puissance est constituée de quatre étages d’amplification avec des amplificateurs à barreau, et à disques, de diamètres croissants (16, 25, 45 et 108 mm).

L'alternance des verres silicate et phosphate dopés au néodyme (Nd^{3+}) permet de minimiser le rétrécissement spectral par le gain, les deux verres ayant des domaines spectraux d'amplification un peu décalés l'un par rapport à l'autre. Une énergie totale de 100 J (pour une durée de 500 ps et une largeur spectrale de 6nm) est obtenue en fin de chaîne.



Figure 3.3 – Photo de la salle expérimentale du laser 100 TW au LULI, présentant le compresseur sous vide (gauche) et l'enceinte d'interaction (droite).

Un système d'optique adaptative, constitué d'un miroir déformable et d'un analyseur de la phase du faisceau laser a été intégré dans la chaîne pour permettre de corriger les déformations du faisceau induites dans la chaîne. En effet, la cadence de répétition est limitée par le temps de refroidissement des barreaux d'amplification. L'optique adaptative permet de compenser tir à tir les inhomogénéités des barreaux. De cette manière, on dispose d'un faisceau 100 TW focalisé (jusqu'à quelques 10^{19} W/cm^2) de bonne qualité à la cadence d'un tir toutes les 20 minutes.

3.1.3 Les lasers de l'INRS

L'INRS dispose de plusieurs installations lasers à haute-cadence. Deux de ces installations ont été utilisées dans ce travail, et sont décrites dans cette section.

Le laser BMI

L'installation BMI de l'INRS fonctionne depuis 1996 et permet de produire une puissance instantanée de 10 TW. Ce système, basé sur une technologie Ti-Saphir ($\omega = 800 \text{ nm}$), permet de disposer dans l'enceinte d'interaction de 2 faisceaux laser optiquement synchronisables :

- 250 mJ en 60 fs à ω (100 mJ à 2ω) en sortie d'un compresseur sous vide ayant un contraste en intensité de $\sim 10^{-7}$ à 0,5 ns,
- un faisceau sonde de quelques mJ à ω .

Le schéma décrivant les divers composants du laser (avant compression) est présenté à la figure 3.4. Ce système, compact, est composé d'un oscillateur Ti-Saphir ($\omega = 800$ nm), pompé par un laser Verdi. L'impulsion produite est ensuite étirée temporellement, puis amplifiée, dans différents étages à l'aide de pompage par YAG doublé en fréquence, dans un amplificateur régénératif, un amplificateur 4 passages, un amplificateur 3 passages, et un amplificateur 2 passages. Il présente un taux de répétition de 10 Hz.

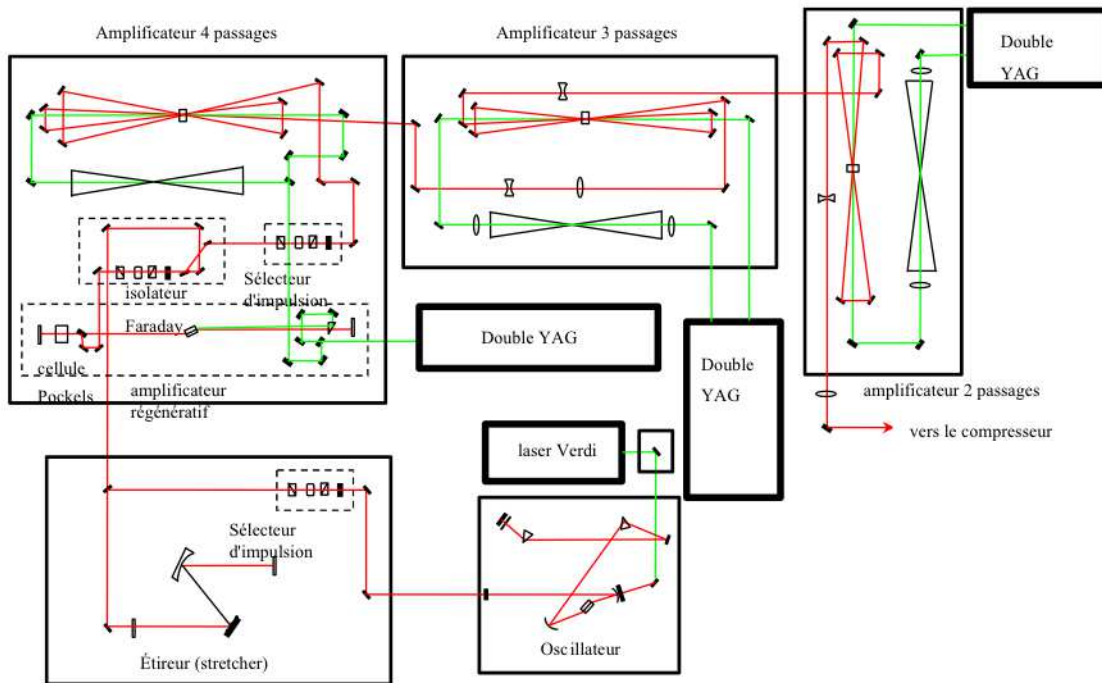


Figure 3.4 – Schéma présentant les différents composants de l'installation 10 TW de l'INRS (avant compression).

Le laser 100 Hz THALES

Le laser de l'installation ALLS (monté en 2005) fonctionne à la fréquence de 100 Hz et fournit une puissance instantanée de 4 TW. Ce système, également basé sur une technologie Ti-Saphir ($\omega = 800$ nm), délivre dans l'enceinte d'interaction de 2 faisceaux laser optiquement synchronisables :

- 100 mJ en 35 fs à ω (40 mJ à 2ω) en sortie d'un compresseur sous vide ayant un contraste en intensité de $\sim 10^{-6}$,
- un faisceau sonde de quelques dizaines de mJ à ω (d'énergie ajustable).

Ce système, plus compact que le précédent, est composé d'un oscillateur, d'un étireur, d'un amplificateur, et d'un compresseur. Il produit des impulsions lasers à 800 nm avec un taux de répétition de 100 Hz, ayant une énergie de 100 mJ. Ce faisceau est comprimé pour obtenir une durée d'impulsion de 35 fs. Le contraste de l'impulsion laser à la fréquence fondamentale est de 10^{-6} dans les gammes picoseconde et nanoseconde, mesuré respectivement par un autocorrélateur du troisième ordre et une photodiode ultra-rapide.

La courbe du spectre de l'impulsion doublée est présentée à la figure 3.5. C'est une gaussienne, centrée autour de 400 nm. Cela nous permet de visualiser l'efficacité du doublage de fréquence par le cristal de KDP.

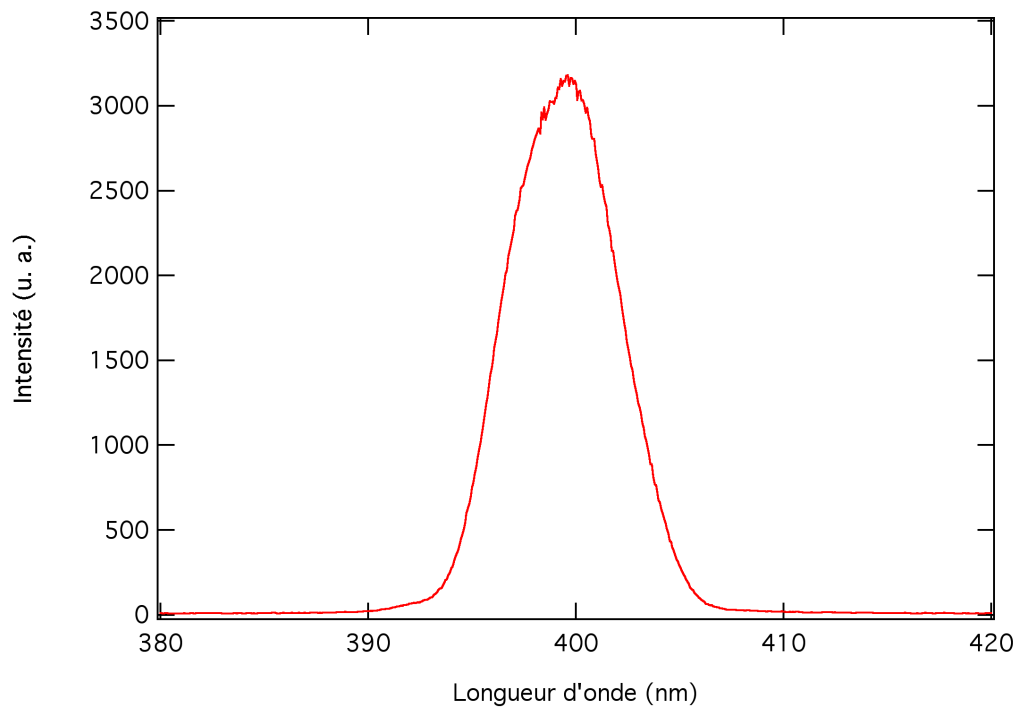


Figure 3.5 – Spectre du faisceau laser 100 Hz après doublage, centré autour de 400 nm (2ω).

3.2 Spectromètres

Pour mesurer un spectre de rayonnement X, nous disposons de différents spectromètres adaptés à la gamme d'énergie étudiée. Les cristaux, dans différentes géométries, les réseaux en réflexion ou en transmission, les multi-couches sont autant d'outils permettant de disperser le rayonnement X. L'outil adapté est choisi en fonction des longueurs d'ondes étudiées et des contraintes géométriques.

Les deux expériences, décrites dans les chapitres 4 et 5, utilisent deux spectromètres différents. Au LULI, le spectromètre est basé sur un cristal à géométrie tronconique, permettant

de sonder la couche K de l'aluminium aussi bien que la couche L du brome (gamme proche du keV). À l'INRS, le spectromètre est basé sur un réseau concave à champ plan, permettant de sonder une plus large gamme spectrale, allant de 200 eV à 1 keV, où se trouvent différents seuils d'absorption comme ceux du VO_2 (~ 500 eV). Ces deux spectromètres présentent la particularité d'avoir un plan de focalisation perpendiculaire à l'axe source-détecteur. En effet, certains détecteurs lourds et encombrants, comme les caméras à balayage de fente, imposent cette contrainte géométrique.

3.2.1 Cristal tronconique

Il existe différentes géométries de cristaux selon leurs applications. La géométrie tronconique (courbé suivant la forme d'un cône) utilisée ici permet d'augmenter le niveau de signal sur un plan de focalisation et d'obtenir un plan de focalisation perpendiculaire à l'axe du cristal. Cette géométrie a déjà été décrite dans de nombreux travaux de thèse (Nagels-Silvert, 2004; Martinolli, 2003).

Principe de fonctionnement

La géométrie tronconique (voir figure 3.6) dérive de la géométrie Van Hamos. Dans cette dernière, un cristal à courbure cylindrique concave focalise le spectre d'un point source polychromatique sur une ligne focale située sur l'axe du cylindre, parallèle à la surface du cristal. (le point source se trouvant également sur le même axe).

Si la surface du cristal est courbée en forme de cône, la ligne focale devient orthogonale à l'axe et se situe dans un plan vertical (parallèle à y dans la figure 3.6). Ce plan contient le sommet du cône (l'apex) et est orthogonal à la ligne nodale¹. Il est possible d'expliquer de manière simple le mécanisme de focalisation en utilisant un modèle analytique dérivé de l'optique géométrique (approximation paraxiale).

Du point de vue spectral, la géométrie conique se comporte de façon identique au cas du cristal plan, puisqu'il n'y a pas de courbure suivant l'axe spectral. L'angle de diffraction θ pour une longueur d'onde λ est déterminé par la formule de Bragg, $\lambda = 2d \sin \theta$, où d est la distance entre deux plans atomiques du cristal.

Par contre, le spectromètre conique peut être traité localement comme cylindrique, avec un rayon de courbure qui décroît en s'approchant du plan image. Il est possible de réécrire la formule du miroir cylindrique² de la façon suivante (voir la figure 3.6) :

¹une ligne tracée sur la surface du cône, passant par son apex et parallèle à l'axe du spectromètre (voir figure 3.6).

² $\frac{1}{p} + \frac{1}{q} = \frac{2 \sin \theta}{r}$

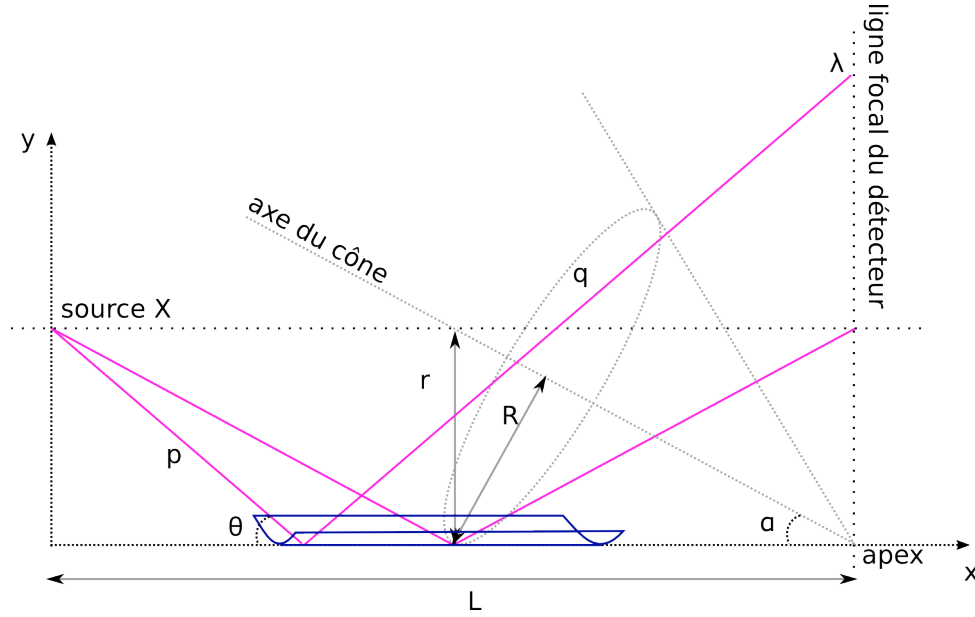


Figure 3.6 – Schéma (plan $x - y$) du mécanisme de focalisation du spectromètre conique. La source est située à l'origine des axes, L est la distance entre la source et le plan image, (x, y, z) est le point d'incidence, p et q sont les rayons incident et réfléchi, R et r sont les rayons de courbure locaux réel et approché. Deux rayons sont montrés ; celui qui est incident au centre correspond (en x, y) à la meilleure focalisation.

$$r(x) = -2\frac{y}{L}(L - x) \quad (3.2)$$

où $r(x)$ est le rayon de courbure local approché du cristal (R étant le rayon réel), L et x sont, respectivement, la distance source-détecteur et l'abscisse du rayon réfléchi (voir figure 3.6). Pour un angle d'incidence donné, il existe une condition de focalisation optimale qui détermine la position et l'ouverture du cône, ainsi que la position de la source. Cet angle correspond à l'angle de demi-ouverture du cône α qui est exactement égal à l'angle de Bragg incident θ , et on a $x = L/2$, donc la distance source-cristal est égale à celle cristal-détecteur.

Cependant, cette description est approximative, puisque le rayon de courbure r ne coïncide pas exactement avec le vrai rayon R de la surface conique. Cela a deux conséquences sur le comportement des rayons les plus obliques (ceux qui sont hors du plan x, y de la figure 3.6, et arrivent avec une incidence $z \neq 0$) : (a) ces rayons produisent une aberration sphérique, qui élargit la taille transverse de l'image, en réduisant la focalisation ; (b) des rayons qui correspondent à la même longueur d'onde ne sont pas focalisés sur le même point (y_i, z_i) sur le plan image, ce qui réduit la résolution spectrale. Ces effets restent négligeables à condition que le cristal ne soit pas très large.

De plus, il est possible d'obtenir une image du point source en plaçant le détecteur légè-

rement en retrait de la ligne de focalisation. De cette façon, il est possible d'imager selon une dimension spatiale le plasma sondé (l'autre dimension étant la dispersion en longueur d'onde).

Caractéristiques du spectromètre tronconique utilisé

La figure 3.7 représente schématiquement deux vues des divers composants de notre montage (la source, le plasma, le cristal, et le détecteur). La première vue représente l'imagerie du spectromètre. On mesure l'image du plasma sondé avec un grandissement spatial égal à L/d . La seconde montre la dispersion spectrale (le spectre d'absorption du plasma). L'image obtenue sur le détecteur est bi-dimensionnelle, espace-longueur d'onde.

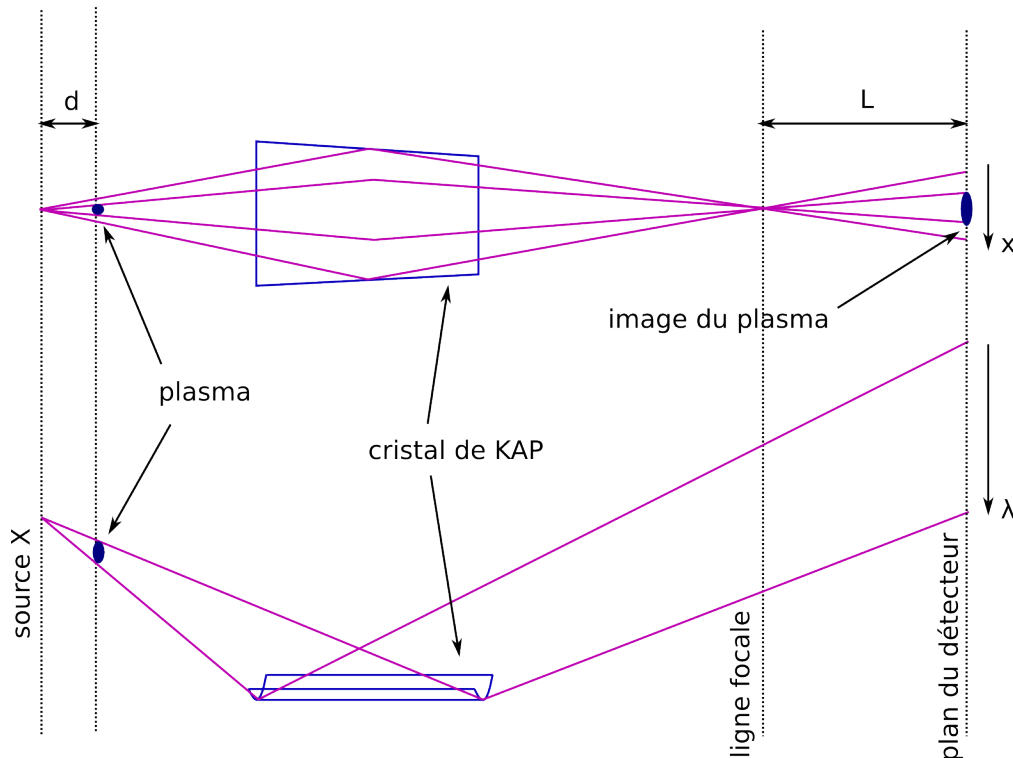


Figure 3.7 – Schéma représentant deux vues des divers composants du spectromètre à cristal tronconique. On montre comment on obtient la résolution spatiale (en haut), et la résolution spectrale (en bas).

Les caractéristiques de notre spectromètre utilisé pour les expériences d'absorption d'un plasma (chapitre 4) sont les suivantes :

- gamme spectrale : 1470 - 1610 eV, correspondant à la couche K de l'aluminium et la couche L du brome,
- résolution spectrale : 2 eV,
- grandissement : 30,

- cristal de KAP ($2d = 2,59 \text{ nm}$) de $30 \times 50 \text{ mm}^2$,
- demi-angle = $0,3 \text{ radian}$ (rayons de courbure minimum : $\sim 88,6 \text{ mm}$, et maximum : $\sim 103 \text{ mm}$).

3.2.2 Réseau concave à champ plan

Nous avons utilisé un réseau Hitachi (001-0450), en incidence rasante, ayant 2400 traits/mm (dépôt en or). Il est concave et à pas variable. La combinaison de ces deux caractéristiques lui permet d'avoir un champ plan, perpendiculaire à l'axe source-détecteur. La figure 3.8 présente les distances de fonctionnement du réseau.

Le spectromètre est optimisé pour la gamme comprise entre 1 et 5 nm. La distance entre la source et le réseau est de 237 mm, celle entre le réseau et le plan spectral est de 235 mm. L'angle d'incidence du rayonnement X sur le réseau est de $1,3 \text{ degré}$ par rapport à la surface du réseau. La résolution en énergie du réseau est en principe $\Delta E/E = 4,3 \times 10^{-4}$ (Nakano et al., 1984) mais comme nous verrons par la suite (section 5.4.2), elle est limitée par notre système de détection.

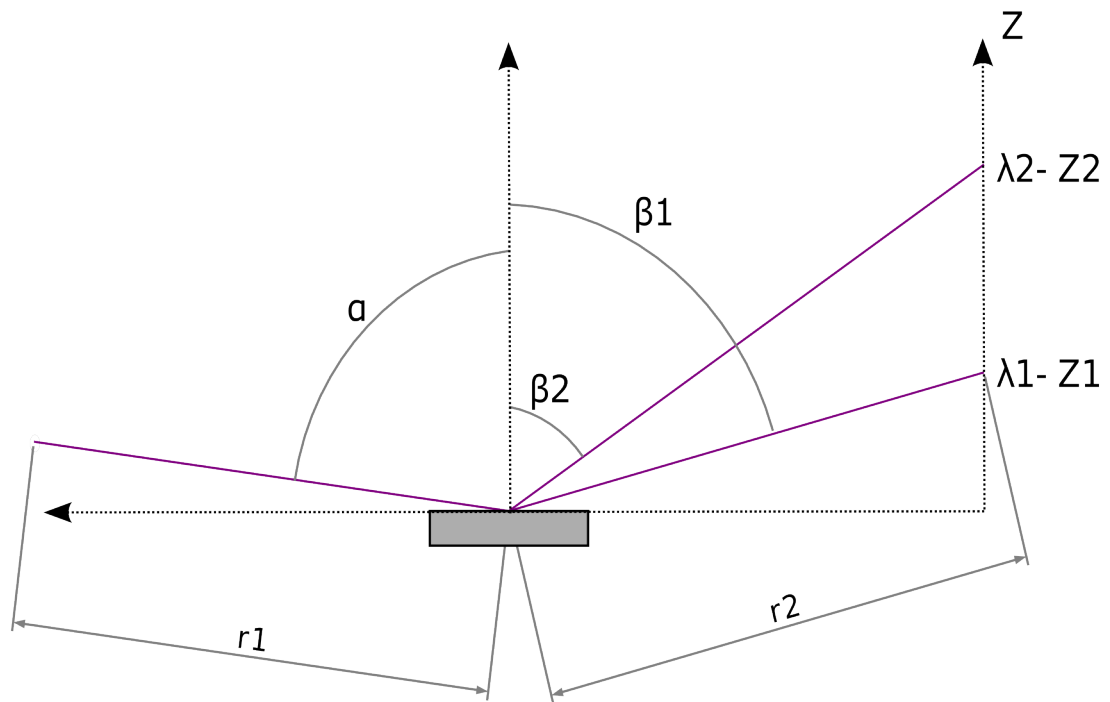


Figure 3.8 – Schéma représentant la géométrie du réseau. Le rayonnement est dispersé en fonction des longueurs d'onde, et focalisé sur un plan perpendiculaire à l'axe du réseau.

La relation de dispersion $Z(\lambda)$, fournie par le constructeur, est donnée par les formules suivantes :

$$Z = r_2 \cos \beta \quad (3.3)$$

où

$$\beta = \arcsin(\lambda G - \sin \alpha) \quad (3.4)$$

$$r_2 = \frac{C_u \cos^2 \beta}{-\frac{C_u}{r_1} \cos^2 \alpha - 2\lambda G b_2 + \cos \alpha + \cos \beta} \quad (3.5)$$

où λ est la longueur d'onde en mm , α est l'angle d'incidence par rapport à la normale du réseau ($88,7^\circ$), G le nombre de traits par millimètre du réseau (2400 traits/mm), C_u le rayon de courbure ($15\,920 \text{ mm}$), b_2 est caractéristique de la variation du pas ($-61,7$), r_1 la distance source-centre du réseau (237 mm), r_2 la distance entre le centre du réseau et le point sur le plan de focalisation (voir figure 3.8). Z est la distance sur le plan de focalisation en mm . Pour permettre l'alignement fin du réseau sous vide, le support du réseau est motorisé suivant les axes x et y , et permet également la rotation autour de l'axe z (voir figure 3.8).

Expérimentalement, il sera nécessaire de convertir les spectres mesurés par le détecteur en longueur d'onde. La formule précédente est non-linéaire et difficilement utilisable. Nous avons effectué un ajustement numérique d'ordre 2 pour effectuer les conversions de nos mesures. La figure 3.9 présente deux courbes, correspondant à la dispersion théorique et à l'ajustement numérique que nous utiliserons.

3.3 Détecteurs

Dans ce travail, différents détecteurs ont été utilisés, sensibles au rayonnement visible ou au rayonnement X, certains permettant d'obtenir une résolution temporelle. Les caméras CCD sont des détecteurs « lents ». Elles ont une large gamme dynamique, une bonne linéarité (en comparaison avec les films photographiques), et sont relativement simples d'utilisation. Les caméras à balayage de fente sont des détecteurs « rapides », elles permettent de mesurer un signal en fonction du temps, ayant une résolution temporelle pouvant descendre jusqu'à la picoseconde. Par contre, elles ont une très faible dynamique et sont assez compliquées à mettre en oeuvre. Couplées à un spectromètre, elles permettent de mesurer un spectre de rayonnement X en fonction du temps, ou tout simplement à synchroniser deux impulsions lasers.

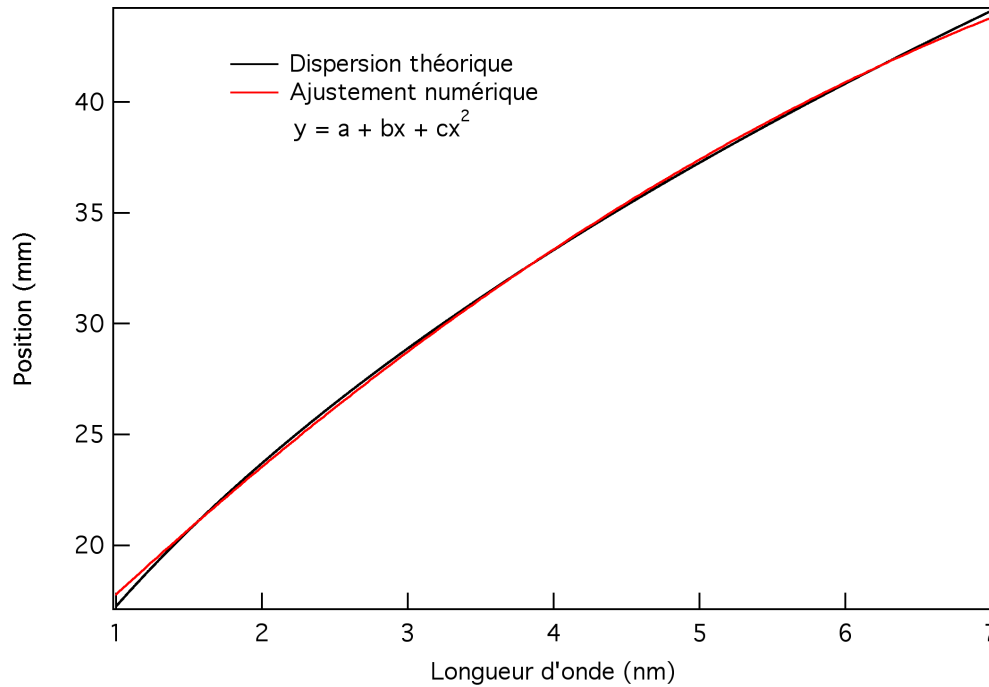


Figure 3.9 – Comparaison entre la dispersion numérique du réseau concave à champ plan et un ajustement numérique d'ordre 2.

3.3.1 Caméra CCD

Le détecteur d'une caméra CCD (*Charge-Coupled Device*, ou détecteurs à couplage de charge) est constitué d'une matrice de photodétecteurs (pixels), transformant les photons qu'il reçoit en paires électron-trou par effet photoélectrique dans le substrat de silicium semi-conducteur type MOS [Janesick et al. \(1990\)](#). Chaque photodétecteur (ou photosite) collecte les électrons dans le puits de potentiel maintenu, ils seront ensuite « comptés » à la lecture de la matrice.

La figure 3.10 présente une coupe d'une caméra CCD. Lorsqu'un photon pénètre dans la zone de silicium dopée p, il crée plusieurs paires électron-trou, dont le nombre est proportionnel à l'énergie du photon. Les électrons créés sont collectés vers le minimum de potentiel et stockés dans le canal dopé n, tandis que les trous diffusent vers le substrat. La tension appliquée aux électrodes et la concentration d'accepteurs de la couche de silicium dopée p déterminent la zone effective de collection, appelée zone de déplétion, ainsi que la zone sans champ précédant le substrat.

L'efficacité quantique dépend de l'énergie incidente du photon (figure 3.11). Le facteur de conversion, entre l'énergie d'un photon et le nombre de coups comptés par la caméra CCD, est donné par :

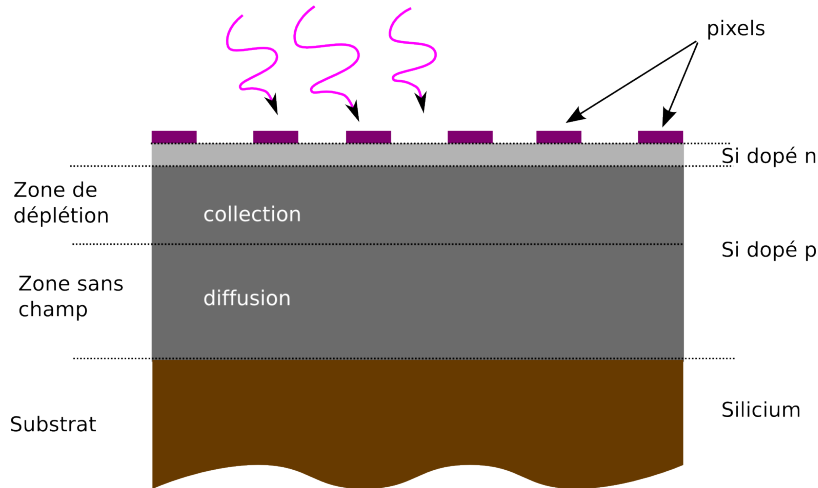


Figure 3.10 – Représentation d’une coupe d’une caméra CCD, identifiant les différents constituants : pixels, Si dopé n, Si dopé p (séparer en deux zones, déplétion et sans champ), et le substrat de silicium.

$$N_{coups} = \frac{E_{photon}}{gap_{Si} (3,65 eV)} \quad (3.6)$$

Les épaisseurs des zones de déplétion et sans champ ont une influence sur la réponse finale de la caméra CCD. Le rendement est particulièrement sensible à la couche de silice qui peut limiter la zone de conversion de photons peu énergétiques, et au champ de piégeage.

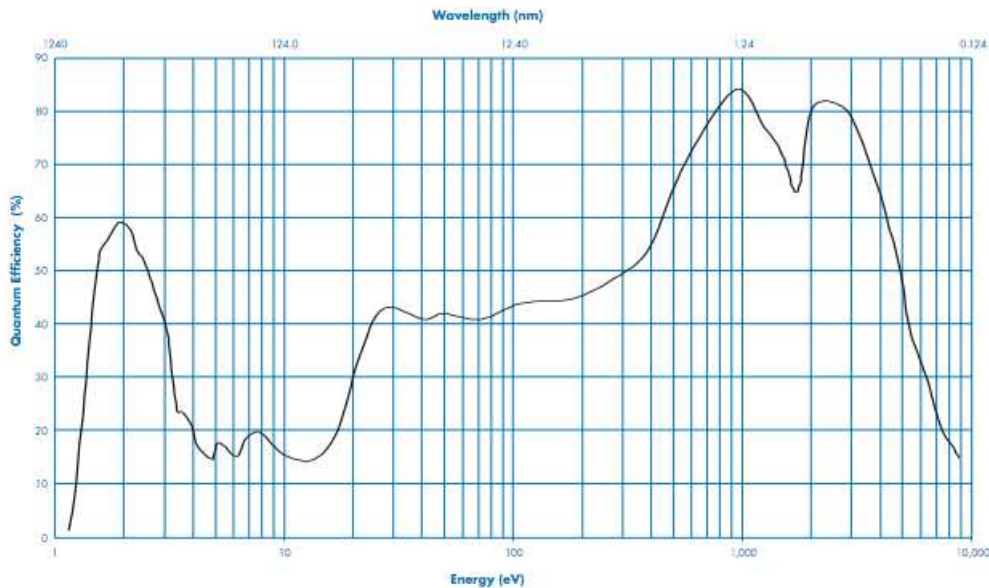


Figure 3.11 – Efficacité quantique de la caméra CCD Princeton Instruments PI-MTE :1300B. Graphique tiré de la documentation constructeur.

Cependant, l’utilisation de la caméra CCD dans le domaine du rayonnement X pose certains

problèmes, notamment celui de savoir si le rayonnement étudié est supérieur ou inférieur au seuil K du silicium. Si les photons incidents ont une énergie inférieure au keV, les structures polycristallines ne sont plus transparentes. Il faut donc, soit diminuer l'épaisseur des électrodes à leur minimum, soit illuminer la caméra CCD par la face arrière après avoir pris soin de graver le substrat et le silicium à la limite de la zone de déplétion (CCD amincie).

Il est parfois utile de refroidir la caméra CCD afin de diminuer l'une des sources de bruit. En effet, les électrons générés thermiquement dans la caméra CCD ne peuvent être distingués des photo-électrons. Le signal thermique est généré par agitation thermique dans le silicium, indépendamment de tout éclairage. La valeur moyenne de ce signal augmente avec la température de la matrice et le temps de pose (ce que l'on traduit par une « tension d'obscurité »). Sa présence peut s'avérer très gênante puisque les électrons « thermiques », en s'ajoutant à ceux qui sont dus à l'éclairage du capteur, peuvent saturer prématurément la matrice. Diminuer la température de la matrice est un moyen très efficace de réduire le signal thermique (tous les -6°C , le courant d'obscurité est divisé par deux). On peut ainsi utiliser un système de refroidissement Peltier qui maintient la température de la plaquette CCD entre -50 et -20°C , permettant ainsi la détection d'un nombre quasi unique de photons.

Liste des caméras CCD utilisées

- 1024 x 1024 pixels de $25\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$, 16 bits, Photometrics
- 1300 x 1340 pixels $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$, 16 bits, Princeton Instruments PI-MTE:1300B
- 2048 x 2048 pixels $13,5\ \mu\text{m} \times 13,5\ \mu\text{m}$, 16 bits, Princeton Instruments PI-MTE:2048B
- 1024 x 1024 pixels $19\ \mu\text{m} \times 19\ \mu\text{m}$, Photometrics Series 200

3.3.2 Caméra à balayage de fente

Une caméra à balayage de fente est un détecteur permettant de résoudre temporellement un signal lumineux. Couplées avec un spectromètre, ces caméras permettent de mesurer un spectre de rayonnement X en fonction du temps.

La figure 3.12 décrit le fonctionnement d'une telle caméra. Une photocathode est éclairée par le rayonnement X mesuré à travers une fente. Elle convertit les photons X en électrons par effet photoélectrique. Ces derniers sont accélérés et défléchis par une rampe haute tension très rapide. Le paquet d'électrons subit un champ électrique différent en fonction du temps, les premiers électrons étant peu défléchis, les suivants un peu plus, etc... De cette façon, l'information temporelle contenue dans le paquet d'électrons est convertie en une information spatiale. Ensuite, ces électrons frappent un écran phosphorescent en passant à travers une plaque à micro-canaux (MCP pour l'acronyme anglais *Micro Channel Plate*). La plaque

à micro-canaux multiplie le nombre d'électrons incidents par un facteur 10^4 environ afin d'amplifier l'intensité de la tache lumineuse sur l'écran de phosphore. Une caméra CCD accolée à l'écran numérise l'image obtenue afin de pouvoir la traiter numériquement.

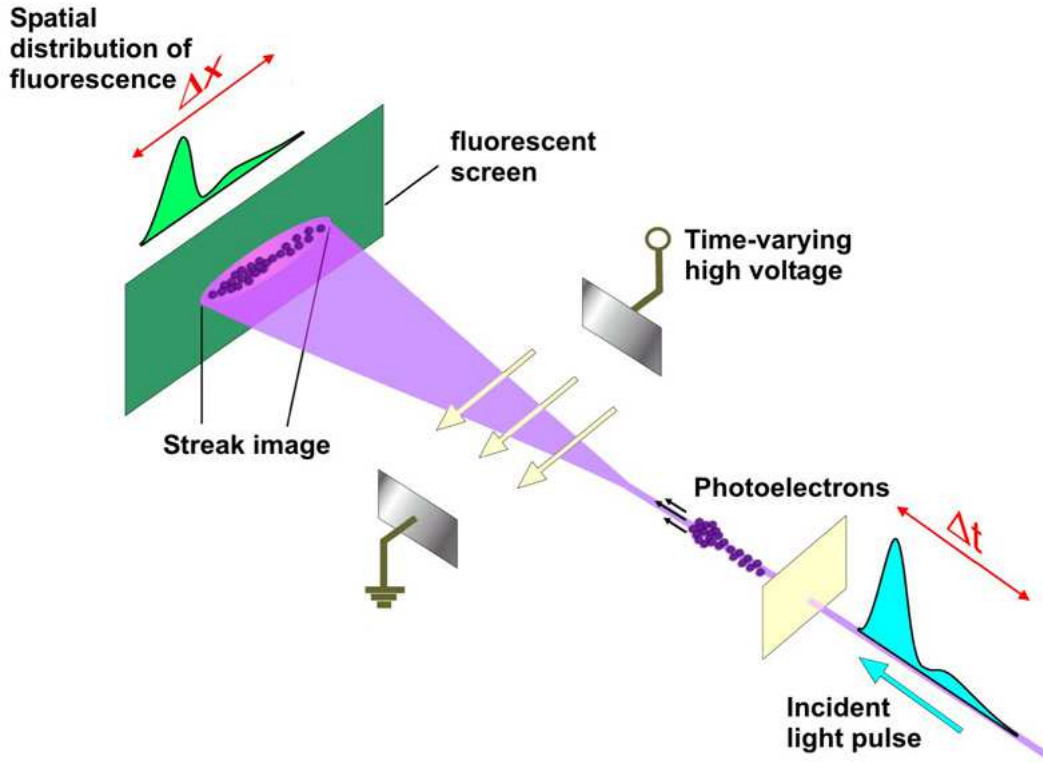


Figure 3.12 – Principe de fonctionnement d'une caméra à balayage de fente. Image : Max Planck Institute for Quantum Optics / Vienna University of Technology

Lors des expériences réalisées à l'INRS, nous avons utilisé la caméra à balayage de fente Axis PX1 couplée à un MCP Photec et à une caméra CCD Photometrics serie 200, refroidie à -40°C . Les caractéristiques du système de détection sont les suivantes :

- dimension de la fente d'entrée de la caméra à balayage : $15 \times 1 \text{ mm}$.
- la photocathode est constituée de 100 nm de KBr, 25 nm d'aluminium, et de 100 nm de lexan. La figure 3.13 présente son rendement électronique (donnée provenant de Axis). Dans la gamme d'énergie étudiée (1 - 5 nm), celui-ci varie entre 0,4 et 0,7. De plus, nous avons testé une photocathode en or (25 nm d'or déposé sur 100 nm de lexan). Celle-ci n'a pas un bon rendement de conversion dans la gamme d'énergie étudiée, et l'intensité du signal était trop faible.
- le tube de focalisation électronique permet une résolution spatiale de $40 \mu\text{m}$, et présente un facteur de grossissement de 1,7 selon l'axe des longueurs d'onde.
- le pavé de fibre optique a une bonne résolution ($< 10 \mu\text{m}$).
- le MCP amplifie le nombre de photons d'un facteur 1800 et a une résolution spatiale de

75 μm (ce dernier limite la résolution spectrale des images résolues en temps du chapitre 5).

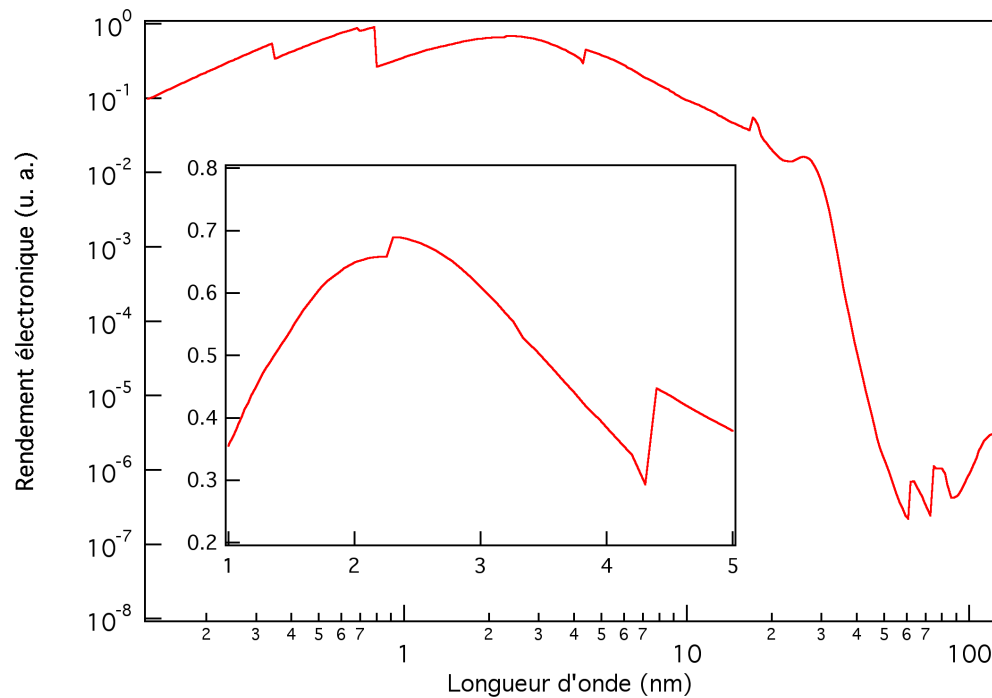


Figure 3.13 – Courbe présentant les caractéristiques d’une photocathode de 100 nm de KBr déposée sur 25 nm d’aluminium et 100 nm de lexan (rendement électronique en fonction de l’énergie).

Caméra à balayage de fente en mode accumulation

Les caméras à balayage de fente ont une très faible dynamique. Pour diminuer le rapport signal sur bruit, il est possible de les utiliser en mode accumulation. Pour cela, il est nécessaire de synchroniser tir à tir les rampes de tension de la caméra à balayage de fente avec le rayonnement X. Les moyens classiques sont liés à l’utilisation de transistors à avalanche qui est la seule technologie existante combinant les hautes tensions et les vitesses de commutation désirées. Le processus d’avalanche dans le semiconducteur génère par collisions, à partir de porteurs libres, beaucoup d’autres porteurs libres. Le démarrage de ce processus est aléatoire ce qui conduit à un décalage de la synchronisation (« *jitter* » en anglais) et diminue la résolution temporelle.

Ce *jitter* temporel est clairement trop élevé pour permettre des expériences en accumulation dans une gamme subpicoseconde. La solution est de générer directement la rampe haute-tension de balayage par un dispositif commandé physiquement par l’impulsion laser elle-même. Cette idée fut initialement proposée au début des années 1980 par Mourou & Knox

(1980). Le dispositif le plus approprié est un commutateur optique à semiconducteur (PCSS en anglais pour *Photoconductor Semiconductor Switch*).

Une portion de l'impulsion laser, prélevée du faisceau principal, commute le photoconducteur. La capacité pré-chargée se décharge alors dans la capacité des plaques de déflexion. La rampe haute tension générée est synchronisée sur l'impulsion la déclenchant. Il existe aussi un *jitter* temporel dû aux fluctuations de l'impulsion laser. La vitesse de la rampe de haute tension est a priori directement proportionnelle à la capacité des plaques de déflexion et à l'impédance de la ligne. Le composant clé de ce système de balayage est le commutateur photoconducteur. Il doit permettre de commuter une tension relativement importante de façon rapide avec une fraction seulement de l'énergie du laser.

En pratique, nous avons utilisé les deux commutateurs optiques n°2, et les avons éclairés de la même manière avec une énergie totale du faisceau de $60 \mu J$.

3.4 Diagnostique plasma : FDI

Le diagnostic d'interférométrie dans le domaine des fréquences (FDI pour l'acronyme anglais *Fourier Domain Interferometry*) permet de mesurer l'expansion hydrodynamique du plasma en fonction du temps. Le principe est de mesurer la phase et l'amplitude d'une impulsion laser réfléchie par un plasma³. L'impulsion est réfléchie à la densité de coupure du laser sonde ($n_c = \frac{m_e \epsilon_0}{e^2} \omega^2$). Le FDI permet de mesurer la position de cette densité critique ainsi que la réflectivité du plasma en fonction du temps. En comparant, la position mesurée et une position calculée à l'aide d'une simulation numérique (MULTI-FS, voir section 3.5), il est possible de remonter aux paramètres thermodynamiques du plasma, comme la densité et la température.

Ce diagnostic a été utilisé pour évaluer de façon indépendante les paramètres du plasma sondé dans le cadre des expériences présentées dans le chapitre 4.

3.4.1 Principe

Le schéma de principe du FDI est présenté à la figure 3.14. Une impulsion laser est focalisée sur la surface arrière de notre cible. Les caractéristiques de cette impulsion sont les suivantes :

- L'impulsion est faiblement comprimée de manière à obtenir un décalage temporel entre les différentes longueurs d'onde, 35 ps dans notre cas. Elle est dite *chirpée* en français, dérivée du mot *chirp* qui signifie étirer (voir section 3.1.1).

³Les principes de base de l'interférométrie dans le domaine des fréquences ont été détaillés par Blanc et al. (1996).

- L'énergie utilisée est très faible. De cette manière, le laser ne chauffe pas le plasma, et ne modifie pas son évolution hydrodynamique.

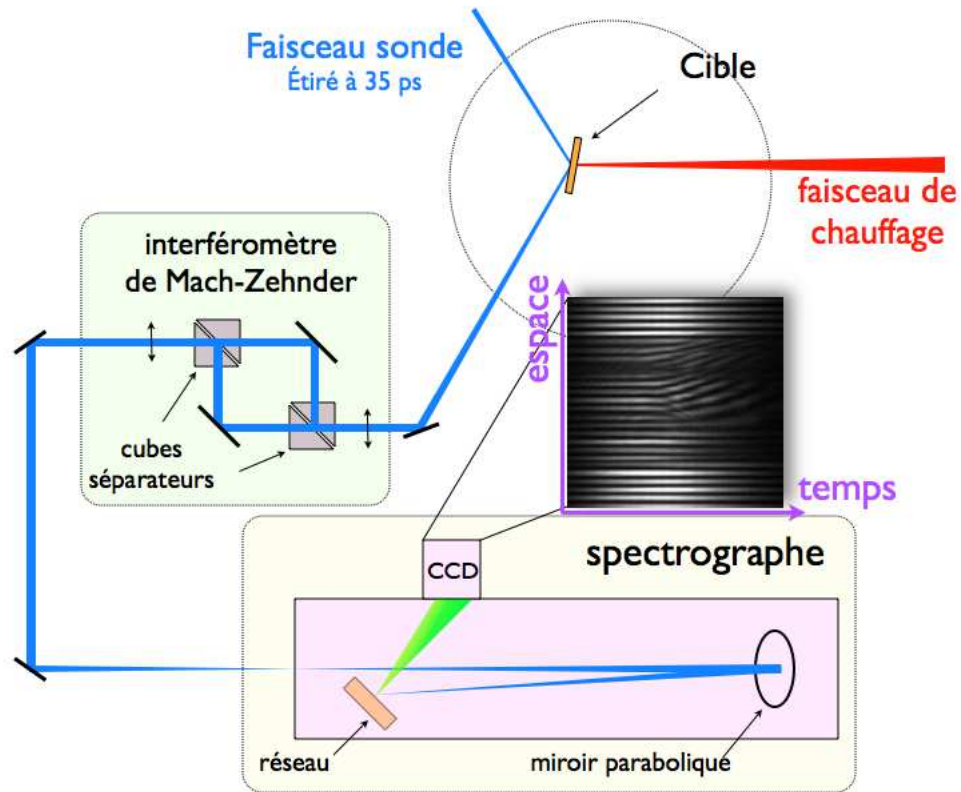


Figure 3.14 – Schéma présentant les principaux éléments du diagnostic FDI : le faisceau diagnostic, l'interféromètre de Mach-Zehnder, et le spectrographe.

Cette impulsion est réfléchiée sur la surface arrière du plasma, au niveau de la densité critique. Comme le plasma se déplace pendant l'interaction, chaque longueur d'onde du faisceau est réfléchiée par une nouvelle position de la densité critique. Le faisceau réfléchi entre dans un interféromètre de Mac-Zehnder. Il produit une image à 2 dimensions de la cible avec des franges d'interférence *blanches*, c'est-à-dire toutes longueurs d'onde confondues.

Le spectromètre à haute résolution (Czerny-Turner) permet de résoudre l'information temporelle, incluse pour chaque longueur d'onde : la fente d'entrée du spectromètre (perpendiculaire aux franges) sélectionne une ligne de l'image bi-dimensionnelle (en général au centre de l'image), et la diffracte en fonction de la longueur d'onde. Il en résulte une image où les franges d'interférences sont décrites pour chaque longueur d'onde du faisceau incident, c'est-à-dire pour toute la durée du faisceau. On obtient l'interférogramme qui donne la phase du faisceau réfléchi en fonction de l'espace et du temps.

Il faut ajouter qu'il est nécessaire de mesurer un interférogramme de référence afin de déterminer la condition de phase nulle. Cette mesure est réalisée avec un faisceau sonde, sans produire le plasma (la cible reste dans son état solide).

On détermine la vitesse d'expansion de la surface critique du plasma à l'arrière de la cible, avec une résolution spatiale, en mesurant l'évolution temporelle de la phase d'une impulsion sonde réfléchiée par le plasma. La mesure de l'amplitude de l'onde réfléchiée permet d'accéder au coefficient d'absorption du faisceau sonde par le plasma.

Les sections suivantes présentent les éléments permettant l'analyse des images obtenues.

3.4.2 Le faisceau sonde

La résolution temporelle des franges spatiales est obtenue via l'utilisation d'un faisceau sonde à dérive temporelle de fréquence (impulsion *chirpée*). On peut ainsi faire un lien entre la longueur d'onde du faisceau sonde et l'instant d'analyse. La technique employée pour créer un faisceau *chirpé* est de modifier la distance entre les réseaux du compresseur : une phase spectrale quadratique $\phi^2(\omega_0)$ est alors introduite. L'impulsion gardera le même spectre mais sera plus longue. Dans ce cas, on peut définir la relation « temps-fréquence », à travers le paramètre caractéristique a , telle que :

$$\omega(t) = at + \omega_0 \quad (3.7)$$

où $a = \frac{1}{\phi^2(\omega_0)}$.

Ainsi, une perturbation temporelle dt se traduit par une perturbation spectrale de largeur $d\omega$ sur le spectre, tel que $d\omega = a \cdot dt$.

3.4.3 Interféromètre de Mach-Zehnder

L'interféromètre de Mach-Zehnder permet d'obtenir un interférogramme de la cible. La figure 3.15 présente le schéma de principe. L'impulsion laser est séparée en deux par un premier cube séparateur, puis les deux faisceaux se rejoignent à l'aide du second cube. De cette façon, on introduit une différence de marche entre les faisceaux 1 et 2.

En sortie de l'interféromètre, on peut écrire les champs électriques associés aux deux faisceaux :

$$E_1(t, x) = T \cdot \overline{E(t, x)} \exp(-i\omega_0 t) \quad (3.8)$$

$$E_2(t, x) = R \cdot \overline{E(t + \delta t, x)} \exp[-i\omega_0 (t + \delta t)] \quad (3.9)$$

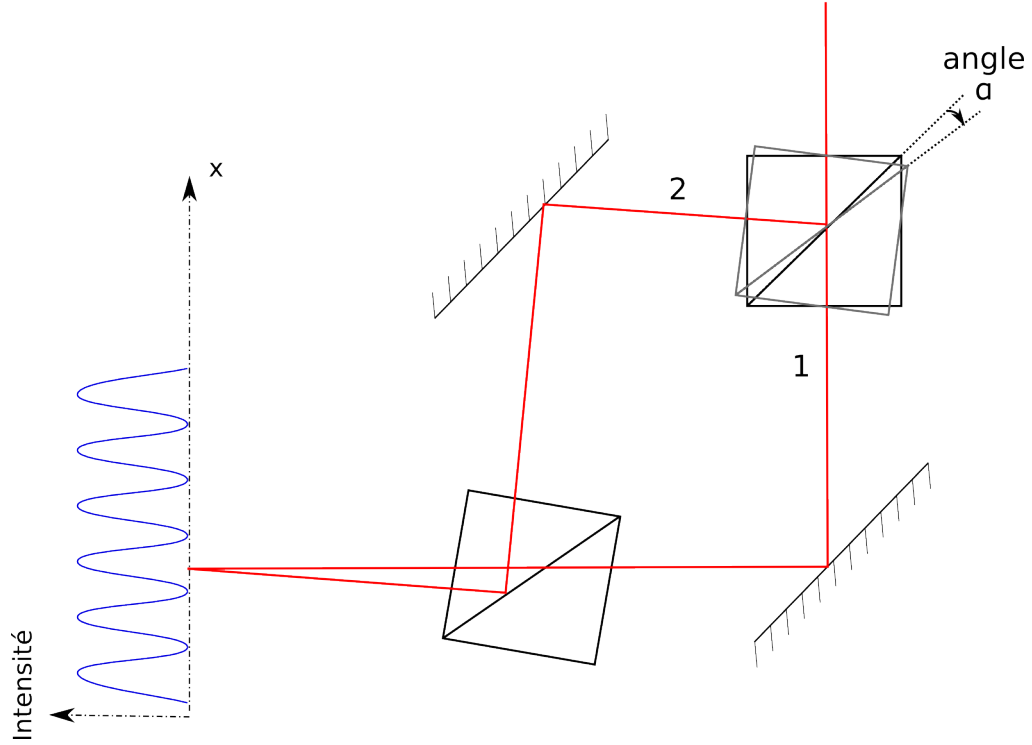


Figure 3.15 – Schéma de principe de l'interféromètre de Mac-Zehnder, présentant les différences trajets optiques du faisceau laser.

où ω_0 est la pulsation centrale de l'impulsion laser, x la position du champ selon une dimension spatiale, R et T sont respectivement les coefficients de réflexion et de transmission du premier cube séparateur, et δt la différence de chemin optique introduite par le Mach-Zehnder. Pour une rotation du premier cube d'un angle α , on obtient :

$$\delta t(x) = \frac{2x}{c} \left(\frac{1 - \cos \alpha}{\sin \alpha} \right) \quad (3.10)$$

où c est la vitesse de la lumière.

La superposition des deux champs s'exprime sous la forme :

$$\begin{aligned} S(x) &= \int_{-\infty}^{+\infty} |E_1(t, x) + E_2(t, x)|^2 dt \\ &= I(x) \left\{ T^2 + R^2 + 2TR \cdot G[\delta t(x)] \cos[\omega_0 \delta t(x)] \right\} \end{aligned} \quad (3.11)$$

où $I(x)$ est la répartition spatiale d'intensité, et $G[\delta t(x)]$ la fonction d'autocorrélation nor-

malisée. Ces deux fonctions sont définies de la façon suivante :

$$I(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t, x)|^2 dt \quad (3.12)$$

$$G(t) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} |E(t', x)| \cdot |E(t - t', x)| dt'}{\int_{-\infty}^{+\infty} |E(t, x)|^2 dt} \quad (3.13)$$

L'équation 3.11 nous montre que l'on obtient une figure d'interférence, généralisable à deux dimensions (dans un plan), dont le contraste est contrôlé par G . Expérimentalement, on obtient une image de la face arrière de la cible, modulée par les franges d'interférence.

Pour qu'il y ait des interférences entre les faisceaux 1 et 2, les deux paquets d'onde doivent se superposer spatialement et temporellement. C'est-à-dire qu'il n'existe des interférences que si la différence de marche δt est inférieure à la durée d'impulsion :

$$\delta t < \Delta T_0 \quad (3.14)$$

À cette étape, on a une image à deux dimensions spatiales de la cible.

3.4.4 Information temporelle

L'information temporelle est contenue dans chaque longueur d'onde du faisceau étiré. Pour résoudre l'information, on utilise un spectrographe qui va disperser le rayonnement selon une dimension spatiale. Ce spectrographe à haute résolution est de type Czerny-Turner. La fente d'entrée du spectromètre est perpendiculaire aux franges obtenues de l'interféromètre. Chaque frange sera dispersée spectralement, et l'on obtient une image bi-dimensionnelle, une dimension spatiale et une dimension spectrale.

La figure 3.16 présente un interférogramme spatio-spectral expérimental. L'impulsion du faisceau sonde est représentée en fonction du temps. Il y a une correspondance directe entre les longueurs d'onde de l'impulsion laser et le temps. Du plus, il est ajouté sur la figure la perturbation induite sur l'élément sondé, qui correspond au moment où les franges se modifient.

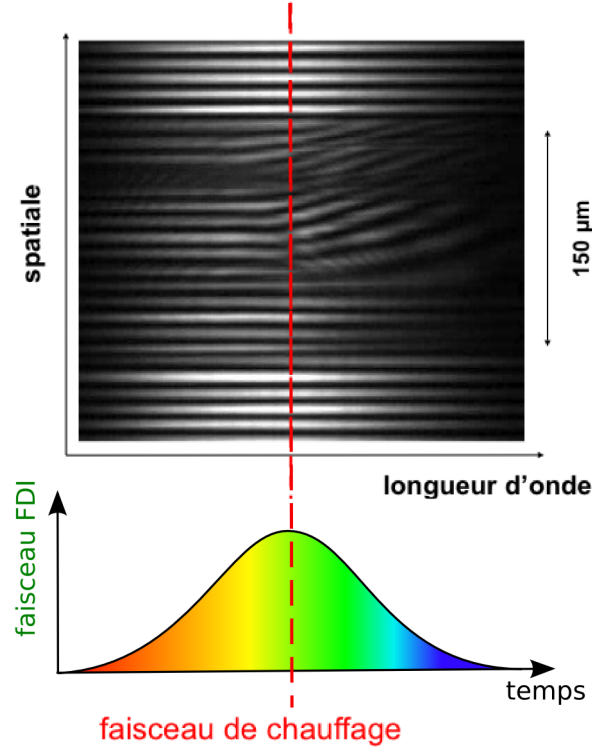


Figure 3.16 – Interférogramme spatio-temporelle et la correspondance temps/longueur d’onde du faisceau sonde.

3.4.5 Extraction de l’information

Il faut ensuite extraire une information utilisable de l’image ainsi obtenue, c’est-à-dire la phase et la réflectivité du faisceau sonde réfléchi par le plasma. Cette étape est réalisée numériquement à l’aide d’un programme écrit en LabView. Pour cela, il est nécessaire d’avoir une image de référence, obtenue lorsque l’on ne produit pas le plasma. La figure 3.17 présente la reconstruction de la phase expérimentale du faisceau sonde (a) à partir de l’image spatio-spectrale obtenue à l’aide du diagnostic FDI (b).

Les détails pour la reconstruction de la phase et de l’amplitude sont explicités dans la thèse de Sandrine Rebibo (2000). Pour résumer l’essentiel, le coefficient de réflexion complexe $R(\omega)$ et le déphasage $\Delta\Phi(\omega)$ sont extraits de la comparaison signal effectif avec le signal de référence (Geindre et al., 2001). Si l’on connaît le paramètre du *chirp* linéaire de l’impulsion sonde a , on peut connaître la perturbation temporelle. En effet, le champ créé par l’impulsion *chirpée* E_c peut être écrit dans le domaine des fréquences, sous la forme :

$$E_c(\omega) = \mathcal{F}[E_c(t)] = E_0(\omega) \exp\left(\frac{j(\omega - \omega_0)^2}{a}\right) \quad (3.15)$$

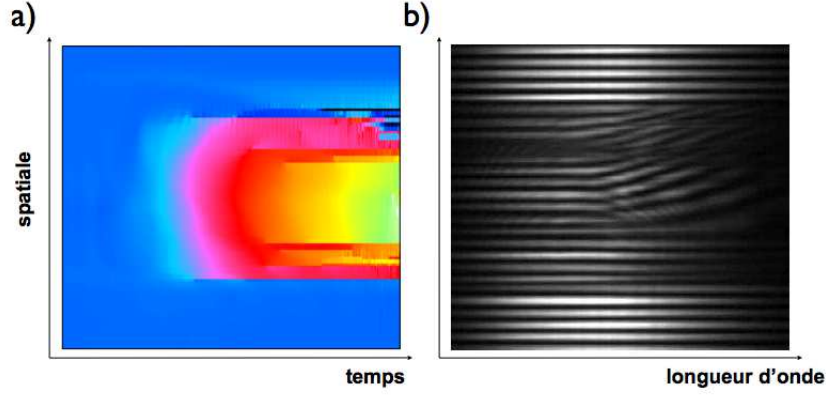


Figure 3.17 – Reconstruction de la phase expérimentale du faisceau sonde (a) à partir de l'image spatio-spectrale obtenue à l'aide du diagnostic FDI (b).

avec E_0 le champ généré par l'impulsion laser, ω_0 la fréquence centrale et a le coefficient linéaire du *chirp* en fréquence (où \mathcal{F} désigne l'opérateur de transformée de Fourier). Nous construisons le champ électrique de l'impulsion réfléchi en multipliant le champ par la perturbation plasma, ainsi :

$$E(\omega) = E_c(\omega) \sqrt{R(\omega) \exp(j\Delta\Phi(\omega))} \quad (3.16)$$

La perturbation $P(t)$ dans le domaine temporel peut facilement être déduite en effectuant une transformée de Fourier inverse,

$$P(t) = \frac{\mathcal{F}^{-1}[E(\omega)]}{E_c(t)} \quad (3.17)$$

où $E_c(t)$ est l'impulsion *chirpée* initiale dans le domaine temporel (où \mathcal{F}^{-1} désigne l'opérateur de transformée de Fourier inverse). À l'aide de cette procédure de reconstruction de signaux, fondée sur la connaissance des paramètres du *chirp*, nous parvenons à une résolution temporelle comparable à la durée de l'impulsion du faisceau sonde compressé, i.e., environ 500 fs.

Toutes les étapes décrites précédemment permettent de mesurer les perturbations du faisceau laser, induites par la détente du plasma. Ces perturbations sont les changements de phase et de réflectivité de l'impulsion en fonction du temps. La mesure de la phase est ensuite comparée à celle calculée par une simulation hydrodynamique, décrite dans la section suivante, et permet de déduire la densité et la température du plasma sondé.

3.5 Simulation hydrodynamique : MULTI-FS

Cette section présente le code hydrodynamique MULTI-FS (Eidmann et al., 2000). Couplé avec le diagnostic FDI, il nous a permis de déduire les paramètres thermodynamiques du plasma sondé (chapitre 4).

Tout d’abord, les principales hypothèses du modèle sont décrites, ainsi que les principales équations utilisées permettant de calculer l’interaction en régime sub-picoseconde. Ensuite, une simulation typique (feuille d’aluminium) est décrite, et présente l’influence du choix de la table d’équation d’état sur la simulation.

3.5.1 Description du modèle

MULTI-FS est un code hydrodynamique pour simuler l’interaction laser-plasma dans le régime femtoseconde développé par Eidmann et al. (2000). C’est une évolution du code mono-dimensionnel (1D) lagrangien MULTI (pour *MULTI*group radiation transport in *MULTI*layer foils), utilisé en régime nanoseconde.

MULTI a été développé par Ramis et al. (1988). Il résout les équations hydrodynamiques 1D couplées au transfert radiatif. Le traitement du transfert radiatif est assuré par la méthode dite de diffusion multi-groupe en fréquence. La stabilité numérique est garantie par l’emploi d’une méthode de calcul totalement implicite. La physique atomique de MULTI est simplifiée par l’utilisation de tables d’émissivité et d’opacité calculées par un modèle d’atome moyen hydrogénique écranté. MULTI-FS prend en compte la physique de l’interaction avec des impulsions ultra-courtes. Les trois modifications essentielles ajoutées au code initial de Ramis sont :

1. la propagation de la lumière dans un gradient de matière très raide,
2. la modélisation de la fréquence de collision électronique,
3. l’utilisation de tables d’équation d’état (EOS) différentes pour les électrons et les ions.

En ce qui concerne le premier point, les équations de Maxwell sont résolues explicitement pour calculer la propagation de lumière dans la matière sur une grille de haute résolution, alors que c’est l’approximation WKB qui est utilisée dans MULTI.

Le second point renvoie en premier lieu à l’absorption collisionnelle du rayonnement laser par le plasma, mais aussi à l’énergie entre les ions et les électrons, et la conductivité thermique qui est importante pour la propagation des ondes de chauffage électronique dans la zone dense. La gamme des états de la matière d’un solide froid à un plasma chaud implique différents

régimes physiques. Alors que dans le régime plasma la fréquence de collision ν est basée sur les collision Coulombienne ($\propto T_e^{-3/2}$), ν est déterminé dans un solide froid par l'interaction entre les électrons et les vibrations du réseau (ou des phonons), et est donc proportionnel à la température des particules lourdes ($\propto T_i$) (Ashcroft & Mermin, 1976). En interpolant entre ces deux régimes, des formules approximées pour la conductivité électrique, la conduction par chauffage électronique, et la relaxation électrons-ions ont été introduites.

3.5.1.1 Les équations hydrodynamiques

Les équations utilisées dans MULTI-FS diffèrent de la version originale MULTI où les températures électroniques et ioniques sont égales ($T_e = T_i$). En prenant en compte un déséquilibre entre les températures électroniques et ioniques ($T_e \neq T_i$)⁴, les équations résolues par MULTI-FS sont :

$$\frac{\partial v}{\partial t} - \frac{\partial u}{\partial m} = 0 \quad (3.18)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\partial(p_e + p_i)}{\partial m} = 0 \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial \epsilon_e}{\partial t} + p_e \frac{\partial u}{\partial m} = -\frac{\partial S_e}{\partial m} - \sum_k \frac{\partial S_k}{\partial m} + \frac{\partial S_L}{\partial m} - \gamma(T_e - T_i) \quad (3.20)$$

$$\frac{\partial \epsilon_i}{\partial t} + p_i \frac{\partial u}{\partial m} = \gamma(T_e - T_i) \quad (3.21)$$

où m , u , v , $p_{e,i}$, et $\epsilon_{e,i}$ sont respectivement la coordonnée de masse Lagrangienne, la vitesse du fluide, le volume spécifique ($v = 1/\rho$), les pressions et les énergies internes des électrons et des ions. $\partial S_L / \partial m$ est l'énergie déposée par le laser par unité de temps et de masse. S_e est le flux de chaleur électronique. γ est le coefficient de couplage entre les ions et les électrons. S_k est le flux radiatif des photons du groupe k ayant des énergies telles que $h\nu_k \leq h\nu \leq h\nu_{k+1}$.

3.5.1.2 Résolution des équations de Maxwell

Pour résoudre les équations de Maxwell, le profil est subdivisé en fines tranches caractérisées par un index local de réfraction $\hat{n} = \sqrt{\epsilon}$. Pour un plasma ou un métal ayant une densité électronique n_e , exposé à un champ laser haute fréquence $\propto \exp(-i\omega_L t)$, la constante diélectrique ϵ peut être écrite de la manière suivante (Born & Wolf, 1980) :

⁴Depuis la première version, il existe des versions de MULTI prenant en compte deux températures différentes.

$$\epsilon = \hat{n}^2 = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega_L(\omega_L - i\nu)} \quad (3.22)$$

où $\omega_{pe} = (4\pi n_e e^2 / m_e)^{1/2}$ est la fréquence plasma, ω_L est la fréquence du laser, et ν est la fréquence de collision électronique, qui détermine l'absorption du laser par le plasma. Les tests ont montré une bonne précision lorsque l'épaisseur des subdivisions de la grille est de l'ordre de 1 Å.

3.5.1.3 Conductivité électrique haute fréquence

Pour un plasma chaud, la formule de Spitzer (Spitzer, 1956; Johnston & Dawson, 1973) est utilisée pour la fréquence de collision :

$$\nu_{Spitzer} = \frac{4}{3} (2\pi)^{1/2} \frac{\langle Z \rangle e^4 m_e n_e}{(m_e k_B T_e)^{3/2}} \ln(\Lambda) \quad (3.23)$$

où, $\langle Z \rangle$ est le degré d'ionisation moyen, T_e la température électronique, et $\ln(\Lambda)$ le logarithme coulombien, avec $\Lambda = (1 + (b_{max}/b_{min})^2)^{1/2}$. Le paramètre d'impact maximum est $b_{max} = (k_B T_e / m_e)^{1/2}$ et le paramètre d'impact minimum $b_{min} = \max[\langle Z \rangle e^2 / k_B T_e, \hbar / (m_e k_B T_e)^{1/2}]$. \hbar et k_B sont respectivement les constantes de Planck et de Boltzmann.

Dans la limite d'un solide froid ayant des températures inférieures à la température de Fermi (11,7 eV pour l'aluminium (Ashcroft & Mermin, 1976)), les électrons sont dans un état dégénéré. La fréquence de collision ne dépend plus que de la diffusion des électrons par les phonons ou vibrations du réseau. Pour des températures supérieures à la température de Debye et inférieures au point de fusion, la fréquence de collision est la suivante :

$$\nu_{el-phonon} \approx 2k_s \frac{e^2 k_B T_i}{\hbar^2 v_F} \quad (3.24)$$

où v_F est la vitesse de Fermi ($v_F = \hbar(3\pi^2 n_e)^{1/3} / m_e$), k_s une constante numérique (Yakovlev & Urpin, 1980), et T_i la température du réseau.

La fréquence de collision est une moyenne harmonique des fréquences données par les équations 3.23 et 3.24, et est donnée par :

$$\nu^{-1} = \nu_{Spitzer}^{-1} + \nu_{el-phonon}^{-1} \quad (3.25)$$

Dans la gamme comprise entre les hautes (éq. 3.23) et les basses (éq. 3.24) températures, les approximations ne sont plus valides. En examinant le libre parcours moyen des électrons λ_e , on trouve qu'autour du maximum de ν , λ_e est considérablement en dessous des distances inter-atomiques. Pour éviter ce comportement non physique, il a été utilisé pour MULTI-FS un critère qui requiert que λ_e ne doit pas être plus petit que le rayon r_0 de la sphère ionique, i.e. $\lambda_e > r_0$, où $r_0 = (3/4\pi n_i)^{1/3}$ et n_i est la densité ionique. Le critère est équivalent à :

$$\nu < \frac{v_e}{r_0} \quad (3.26)$$

où v_e est une vitesse caractéristique de l'électron, définie comme $v_e = \sqrt{v_F^2 + k_B T_e / m_e}$, où v_F est la vitesse de Fermi dans un solide froid et $(k_B T_e / m_e)^{1/2}$ la vitesse électronique dans un plasma chaud.

Comme la résistivité électronique est proportionnelle à ν , la condition de l'équation 3.26 est équivalente à une saturation de la résistivité (Milchberg et al., 1988). Il est à noter que l'utilisation du critère dans le code n'a pas d'effet significatif. En effet, dans la région du plasma où l'impulsion laser est absorbée, les distances inter-atomiques demeurent inférieures au libre parcours moyen des électrons.

3.5.1.4 Chauffage par conduction thermique

La fréquence de collision électronique est aussi importante pour la conductivité thermique κ , qui est rattachée à la conductivité électrique (et donc à la fréquence de collision) via la loi de Wiedemann-Franz : $\kappa \propto \sigma T$. Dans la limite des plasmas chauds, le résultat de Spitzer (Spitzer, 1956) est valide : $\kappa_{Spitzer} = \kappa_0 n_e k_B^2 T_e / (m_e \nu_{Spitzer})$. κ_0 est un facteur sans dimension donné par $\kappa_0 = \delta \epsilon 320 / (3\pi)$. δ et ϵ sont des facteurs de correction, qui dépendent fortement de $\langle Z \rangle$ et sont tabulés (Spitzer, 1956). Par exemple, pour un plasma d'aluminium complètement ionisé $\kappa_0 = 10$.

Pour étendre le résultat de Spitzer aux basses températures, la fréquence de collision a été remplacée par celle de l'équation 3.25. Cette procédure est justifiée par le fait que la conductivité thermique d'un métal froid dégénéré a la même proportionnalité que la conductivité de Spitzer, en accord avec la loi de Wiedemann-Franz $\kappa_{solid} \propto n_e k_B^2 T_e / (m_e \nu)$.

3.5.1.5 Relaxation électron-ion

La troisième quantité qui est en relation à la fréquence de collision électronique est le coefficient de couplage électron-ion, γ dans les équations 3.20 et 3.21. Pour un plasma chaud, γ

est donné par (Spitzer, 1956) :

$$\gamma = \frac{1}{\tau_i} \frac{d\epsilon_i}{dT} = \frac{3m_e k_B \nu}{m_i^2} \quad (3.27)$$

où $d\epsilon_i/dT$ est la chaleur spécifique des ions, égale à $3k_B/(2m_i)$ pour un gaz parfait. $\tau_i = m_i/(2m_e\nu)$ est le temps caractéristique pour le chauffage des ions. La fréquence de collision est donnée par l'équation 3.23 pour un plasma chaud ($\nu = \nu_{Spitzer}$).

Pour couvrir l'ensemble des températures, l'équation 3.27 a été généralisée en utilisant la fréquence de collision interpolée (équation 3.25).

3.5.1.6 Les équations d'état

Les équations d'état (EOS) qui sont les plus utilisées et couvrent le plus large éventail de matériaux sont les tables SESAME. Elles se présentent sous la forme d'une bibliothèque comprenant plusieurs fichiers de points pour un même matériau (quelques dizaines pour l'aluminium). Elles ont l'avantage d'être très faciles à utiliser et peu coûteuses en temps de calcul. Néanmoins, elles ne bénéficient pas toujours d'une bonne continuité entre les différents modèles, ce qui engendre régulièrement des erreurs d'interpolation ou de mauvaises dérivées numériques pour certaines quantités comme la vitesse du son. De plus, l'utilité du système est limitée aux nombres de tables de données disponibles. Pour outrepasser ces restrictions, More et al. (1988) ont mis au point les équations d'état QEOS qui, pour remplacer le processus de lecture-interpolation, calculent les propriétés thermodynamiques de manière semi-analytique. On pourra trouver des informations plus détaillées dans la thèse de Jean-Philippe Colombier (2005).

SESAME

Les tables d'équations d'état SESAME ont été développées au *Los Alamos National Laboratory* depuis la fin des années 70. Elles comprennent près de 200 matériaux : gaz, métaux minéraux et polymères ainsi que certains mélanges. Cette base de donnée provient de plusieurs sources différentes. Suivant le domaine considéré, les informations sont extraites de modèles théoriques, d'expériences dédiées, ou encore d'un mélange des deux, au moyen de paramètres ajustés sur des comportements asymptotiques ou des résultats expérimentaux pour un point précis.

Suivant le matériau, certaines sont multiphasées, d'autres autorisent un découplage thermique électron-ion. Les modèles théoriques distinguent les composantes ioniques et les composantes

électroniques dans les matériaux les plus utilisés comme les métaux. Dans ce cas, les électrons sont décrits sur la base du modèle de Thomas-Fermi-Dirac et les propriétés thermodynamiques ioniques suivent un comportement de type Grüneisen pour les phases surdenses et le modèle de Van der Waals pour des densités inférieures à la densité solide. D'autres modèles plus spécifiques sont aussi utilisés en fonction du matériau et de la région considérée dans le diagramme de phase.

QEOS

Au *Lawrence Livermore National Laboratory* a été développé un modèle d'EOS baptisé *Quotidian Equation of State* (QEOS) en 1988 (More et al.).

Le modèle QEOS décrit les relations thermodynamiques au moyen du potentiel de Helmholtz dissocié en trois contributions distinctes. La première, relative à la contribution due aux électrons libres, est basée sur le modèle de Thomas-Fermi. La seconde rend compte des effets associés aux ions grâce au modèle de Cowan. Celui-ci est lui-même une compilation de plusieurs modèles : gaz parfait à haute température, Thomas-Fermi pour les hautes densités et basses températures ainsi que le modèle de Grüneisen pour les solides. Enfin, le modèle de Barnes fournit la dernière contribution, décrivant les forces de cohésions, ajustées de manière à annuler la pression du solide froid.

Le code QEOS permet de calculer une équation d'état approchée, présentant un bon comportement pour la plupart des matériaux. L'écriture des modèles sous leur forme analytique favorise la facilité d'insertion dans les simulations pour une grande variété d'utilisation. De plus, les équations QEOS peuvent être manipulées avec un traitement séparé des températures électronique et ionique (Ng et al., 1995), ce qui est une condition nécessaire à son utilisation dans des simulations d'interaction laser avec des impulsions ultracourtes.

3.5.2 Exemple d'une simulation d'une feuille d'aluminium

Cette section présente les résultats pour une simulation d'une feuille d'aluminium. Pour remettre cette simulation dans le contexte de l'expérience présentée au chapitre 4, la feuille est en réalité une double couche d'aluminium et de nitrure de silicium (Si_3N_4). La simulation n'est effectuée qu'avec de l'aluminium, d'une épaisseur totale correspondant à l'épaisseur des deux couches. Cela permet d'éviter les problèmes numériques à l'interface des deux couches. De plus, les données relatives à l'aluminium sont mieux connues (comme les EOS, et la conductivité).

Les paramètres choisis pour réaliser cette simulation sont les suivants :

- feuille d'aluminium de 70 nm d'épaisseur (Al : 45 nm + Si_3N_4 : 25 nm),
- 100 cellules lagrangiennes identiques⁵,
- tables d'équation d'état QEOS,
- impulsion laser de 9×10^{14} W/cm², ayant une durée d'impulsion de 400 fs, et interagissant avec la cible sur le côté du Si_3N_4 .

La figure 3.18 représente différents couples de densités-températures le long des 100 cellules du plasma, pour différents délais après l'impulsion laser, entre 1 et 50 ps. Les cellules en rouge correspondent à ce qu'aurait dû être le plasma de Si_3N_4 (remplacé par de l'aluminium pour faciliter la simulation), celles en noire correspondent au plasma d'aluminium.

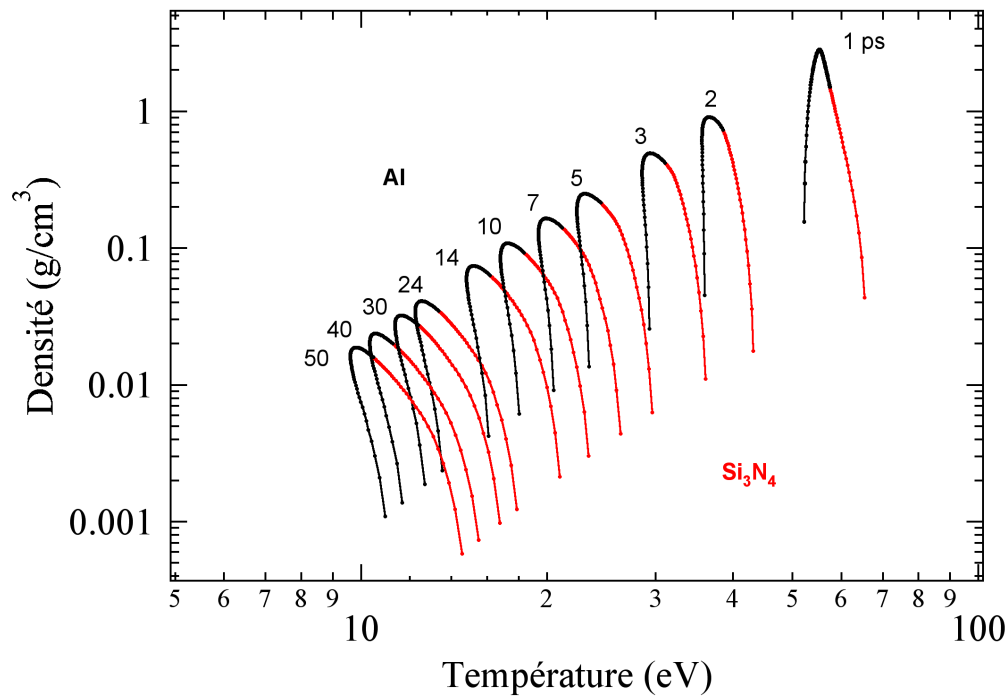


Figure 3.18 – Différents couples de densités-températures le long des 100 cellules du plasma, pour différents délais après l'impulsion laser, entre 1 et 50 ps. Les cellules en rouges correspondent à l'épaisseur du Si_3N_4 , en noires celles de l'aluminium.

Tout d'abord, on remarque que le plasma est plus chaud du côté du laser (côté Si_3N_4), et qu'il est plus dense au centre de la feuille. En effet, les cellules des 2 bords se détendent dans le vide. La détente est plus importante du côté du laser car les cellules sont plus chaudes. De plus, les cellules sont regroupées au centre du plasma, et celui-ci est relativement homogène en densité et en température.

En fonction du temps, on remarque une détente très rapide juste après le chauffage. Les gradients temporels sont très forts.

⁵C'est-à-dire que le produit densité-longueur est le même pour chaque cellule : $\rho l = \text{constante}$.

Influence de l'équation d'état

Nous avons réalisé la même simulation hydrodynamique en changeant la table d'équation d'état. Cela nous permet de quantifier l'influence de cette dernière sur les paramètres thermodynamiques obtenus. La figure 3.19 présente deux simulations réalisées avec deux tables différentes : QEOS et SESAME. Elle montre l'évolution de la densité et de la température en fonction du temps et de l'espace. L'évolution générale est identique dans les deux cas. Le plasma est chauffé à une température d'environ 80 eV et une densité de l'ordre de celle du solide ($\sim 2 \text{ g/cm}^3$), puis se détend avec une vitesse identique.

Pour plus de précision, la figure 3.20 présente différents couples densité-température le long du plasma pour quatre temps différents et pour les deux équations d'états. On remarque que la densité est identique, et que la température est plus froide de 1 ou 2 eV dans le cas de QEOS. Comme nous le verrons dans la section 4.3.1.2, cette différence est marginale, car elle n'influence pas la comparaison entre la mesure du FDI de la phase expérimentale et celle calculée à l'aide de MULTI-FS.

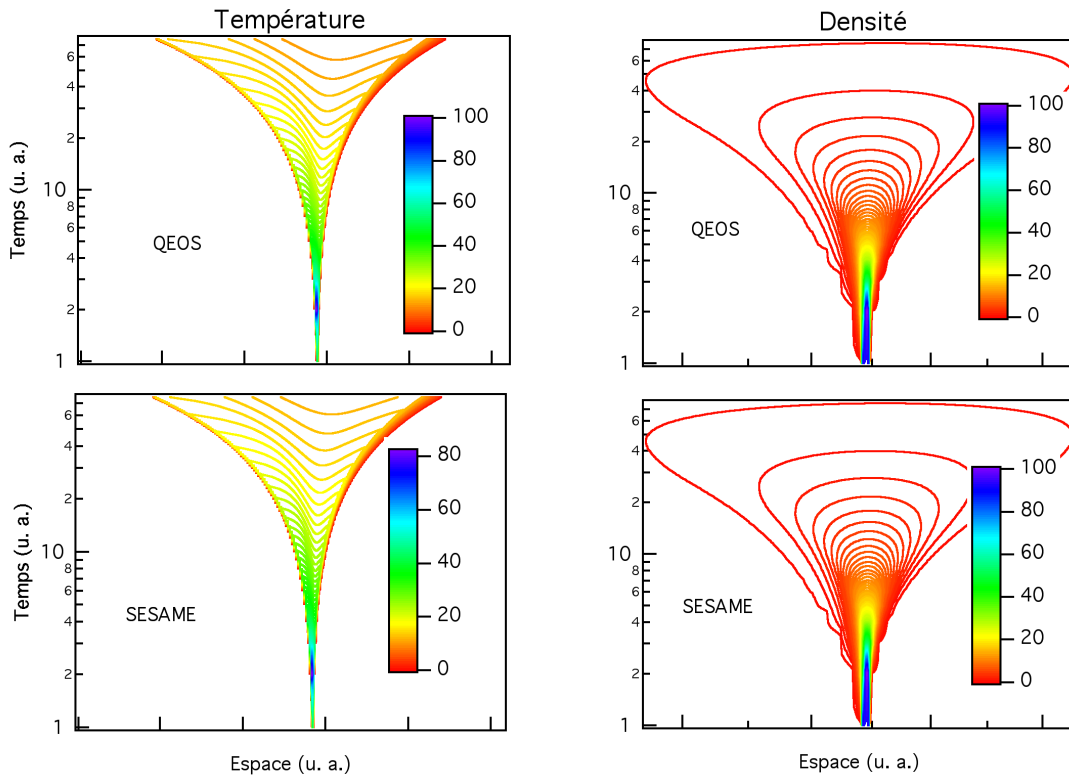


Figure 3.19 – Comparaison de l'évolution hydrodynamique pour deux équations d'états : QEOS et SESAME.

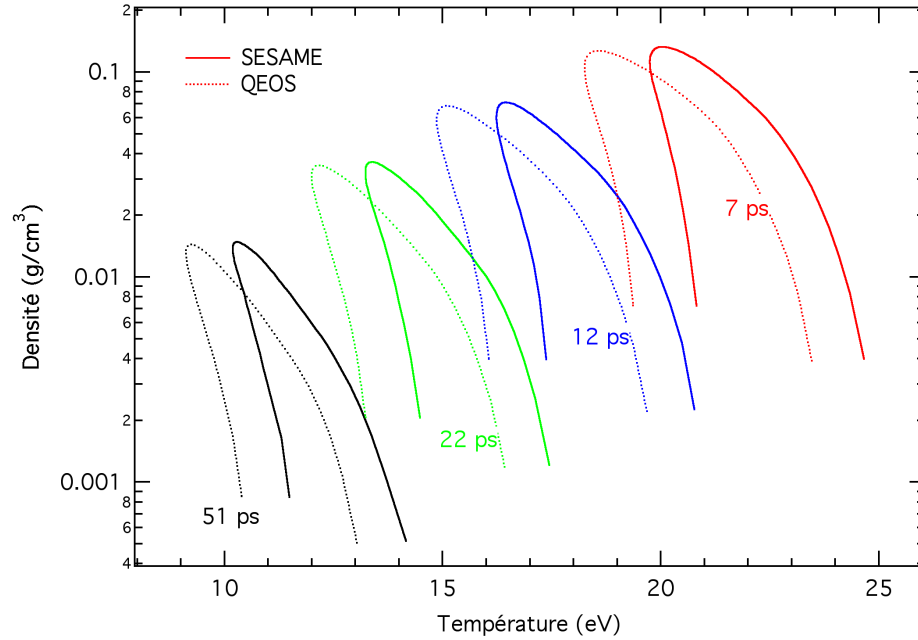


Figure 3.20 – Couples densité-température le long du plasma pour différents temps, et pour 2 équations d'états : QEOS et SESAME.

3.6 Simulation de physique atomique

Dans cette section, deux codes de physique atomique différents sont présentés : TRANSPEC et OPA-S. Le premier est utilisé comme outil de diagnostic d'un plasma. En effet, couplé aux résultats calculés par MULTI-FS, il nous a permis d'évaluer la stationnarité du plasma. C'est-à-dire d'évaluer l'influence des effets temporels sur les propriétés radiatives du plasma. Le second a été utilisé comme outil de comparaison en utilisant des mesures de spectres d'absorption, et nous a permis de valider les hypothèses utilisées par ce dernier.

3.6.1 TRANSPEC

TRANSPEC est un modèle collisionnel-radiatif incluant le transfert de rayonnement dans les raies, écrit pour l'analyse spectroscopique des plasmas (Peyrusse, 1999, 1994). Il a été initialement écrit pour la spectroscopie de couche K, s'appliquant à toute une classe de plasmas chauds (température électronique allant de quelques dizaines d'eV à quelques milliers d'eV) constitués d'ions de numéro atomique intermédiaire tels que $6 \leq Z \leq 26$. La spectroscopie de couche K est celle qui concerne principalement des ions ayant 1 à 3 électrons liés. Ces restrictions initiales correspondent en fait aux bornes de certaines tables de données atomiques disponibles dans la littérature. L'émission en couche K présente l'avantage d'être simple dans

la mesure où les raies intenses sont peu nombreuses, bien résolues les unes des autres. Comme le numéro atomique n'est pas très élevé, les profils de raies sont sensibles à l'élargissement Stark. Ces profils de raies sont perturbés par le plasma existant autour de l'ion émetteur. Ainsi, comme les raies sont bien individualisées, leurs largeurs sont caractéristiques de la densité électronique du plasma. TRANSPEC inclut donc la modélisation de l'élargissement Stark sur des raies de couche K (raies de résonance et satellites diélectroniques).

Le modèle collisionnel-radiatif

Dans la plupart des conditions de densité des plasmas, il est nécessaire d'utiliser un modèle complet, qui considère à la fois les processus collisionnels et radiatifs, et qui doit converger vers l'équilibre thermodynamique local (ETL) pour des densités élevées. La population d'un niveau donné est obtenue en comptabilisant les processus de peuplement et de dépeuplement. On écrit ainsi un système d'équations différentielles qui a la forme suivante :

$$\frac{dN_{Z_i}(i)}{dt} = -N_{Z_i}(i) \sum_{j \neq i} (R_{ij} + n_e C_{ij}) + N_{Z_j}(j) \sum_{i \neq j} (R_{ji} + n_e C_{ji})$$

où $N_{Z_i}(i)$ est la population du niveau i de l'ion de charge Z_i , les termes R et C représentant les processus radiatifs et collisionnels. Le premier terme, négatif, est le dépeuplement du niveau et le deuxième terme, positif, est son peuplement à partir des autres niveaux, notés j , de charge Z_j . Le nombre d'équations à résoudre est alors égal au nombre de niveaux traités. Dans la pratique, on restreint ce nombre en se basant sur les mécanismes collisionnels dominants et la structure atomique à étudier. Le modèle le plus utilisé est un modèle collisionnel-radiatif pour lequel le dépeuplement se fait par processus radiatifs et collisionnels, alors que seuls les processus collisionnels sont pris en compte pour le peuplement. Ceci est schématisé à la figure 3.21.

3.6.2 OPA-S

OPA-S est un code d'opacité à l'équilibre thermodynamique. Il est utilisé pour interpréter les spectres de transmission (Renaudin et al., 2006). Le calcul d'opacité se déroule en trois étapes.

La première consiste à utiliser un modèle hydrogénique moyen, SCAALP, pour calculer de façon auto-consistante l'ionisation moyenne du plasma (\bar{Z}) et les occupations statistiques des sous-couches (Blancard & Faussurier, 2004).

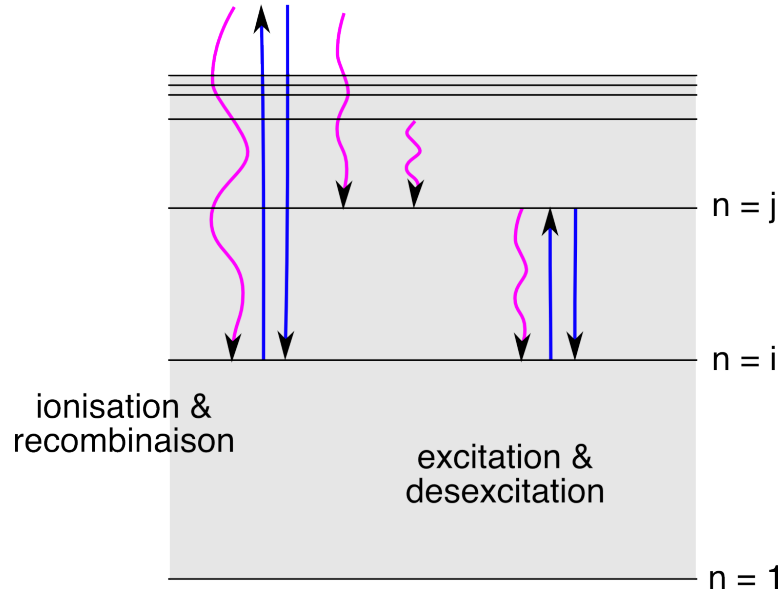


Figure 3.21 – Modèle collisionnel-radiatif utilisé dans TRANSPEC (en bleu : effet collisionnel, en violet : effet radiatif).

La deuxième étape utilise les grandeurs précédentes pour sélectionner un nombre fini de degrés d'ionisation ainsi qu'un jeu de configurations non-relativistes (Blancard & Faussurier, 2003). Les probabilités d'occupation de ces configurations sont déduites d'un calcul d'équilibre de Saha-Boltzmann incluant un abaissement de potentiel (Stewart & Pyatt, 1966). Les énergies des configurations sont évaluées à l'aide de fonction d'ondes mono-électroniques optimisées par degré d'ionisation (Talman, 1989). Le potentiel chimique intervenant dans le calcul d'équilibre de Saha-Boltzmann est ajusté pour obtenir l'ionisation moyenne du code SCAALP. L'analyse de la variation relative des occupations moyennes des sous-couches entre le calcul SCAALP et celui résultant de l'équilibre de Saha-Boltzmann permet de s'assurer de la pertinence du jeu de configurations retenues. L'ajustement du potentiel chimique est généralement faible (de l'ordre de quelques %).

La troisième étape est dévolue au calcul d'opacité spectrale. Les forces d'oscillateurs lié-lié et lié-libre sont évaluées à l'aide de fonctions d'onde mono-électroniques optimisées pour l'ionisation moyenne déduite des occupations moyennes des sous-couches issues de l'équilibre de Saha-Boltzmann. Cette procédure assure la conservation des règles de somme sur les forces d'oscillateurs mono-électroniques.

Opacité lié-libre Pour le calcul de l'opacité lié-libre, les énergies des seuils d'ionisation entre deux configurations sont calculées en incluant un décalage relativiste moyen. Les effets de relaxation d'orbitales sur les énergies des seuils peuvent également être introduits. Les seuils sont ensuite convolués par une gaussienne dont la variance est égale à la somme des variances des énergies des configurations initiale et finale (Bauche-Arnoult et al., 1982).

Opacité liée-liée Pour le calcul de l’opacité lié-lié, trois méthodes sont possibles :

1. Les énergies des transitions entre configurations sont calculées en incluant un éclatement relativiste. Les effets de relaxation d’orbitales sur les énergies des transitions peuvent également être introduits. Une approche statistique (UTA pour *Unresolved Transition Array*) est utilisée pour représenter le faisceau de raies reliant les niveaux des configurations initiale et finale. À chaque faisceau de raies est associée une enveloppe gaussienne dont la largeur et la variance peuvent être calculées exactement dans le cadre des approximations utilisées (Moszkowski, 1962).
2. Une approche détaillant les raies d’absorption reliant les niveaux des configurations initiale et finale (DTA pour *Detailed Transition Accounting*) est également disponible. Le calcul est réalisé en couplage jj en utilisant une approche multi-configurationnelle Dirac-Fock (Bruneau, 1984). La jauge de Coulomb est utilisée en se limitant aux transitions dipolaires électriques. La force d’oscillateur totale résultant d’un tel calcul est normalisée à celle évaluée dans le potentiel moyen afin de satisfaire la conservation des règles de somme concernant les forces d’oscillateur mono-électroniques.
3. Les approches UTA et DTA peuvent être automatiquement mélangées suivant la valeur d’un critère de coalescence relié au nombre statistique de transitions reliant deux configurations (approche HYBRID) (Bauche & Bauche-Arnoult, 1987), à leur largeur, et leur espacement moyens. Un profil de Voigt est associé à chaque transition lié-lié. L’élargissement gaussien dépend des élargissements Doppler thermique et UTA. Lorsque l’on utilise l’approche DTA, il n’existe pas d’élargissement UTA. L’élargissement lorentzien tient compte des élargissements naturels (décroissance radiative et auto-ionisation) et de l’élargissement par impact électronique (Dimitrijevic & Konjevic, 1987).

Opacité libre-libre L’opacité libre-libre est évaluée à partir de la formule de Kramers en utilisant l’ionisation moyenne du plasma et en prenant un facteur de Gaunt égal à l’unité.

Les trois composantes de l’opacité sont corrigées de l’émission induite. La contribution de la diffusion à l’opacité est introduite à l’aide de la section efficace de diffusion Thomson. L’indice de réfraction est supposé égal à l’unité.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu les différents moyens expérimentaux et numériques utilisés durant cette thèse. Ils seront remis dans leurs contextes dans les deux chapitres suivants, qui présentent les résultats expérimentaux de spectroscopie d’absorption dans un plasma ou un solide de VO₂.

Spectroscopie d'absorption de rayonnement X de plasmas denses

DANS ce chapitre, nous allons présenter les mesures expérimentales des propriétés spectrales de plasmas denses et relativement chauds, d'aluminium et de brome, dans des conditions thermodynamiques maîtrisées. Le terme anglais souvent utilisé pour dénommer ce milieu est *Warm Dense Matter* (*WDM*). Les expériences ont été effectuées au LULI. En focalisant une impulsion laser intense, nous avons obtenu des plasmas denses ($0,001 - 1 \text{ g/cm}^3$), et « tiède » ($1 - 10 \text{ eV}$). Dans de telles conditions, on ne peut pas considérer chaque atome de manière indépendante, le milieu influence les propriétés spectrales. De plus, ces dernières sont très différentes en fonction du numéro atomique.

Dans cette partie, je commence par introduire le contexte de l'expérience. Ensuite, je décris la géométrie expérimentale, les échantillons utilisés, la source de rayonnement X produite par laser, et la méthode de caractérisation du plasma sondé. Finalement, je présente différents spectres expérimentaux d'absorption de rayonnement X de plasmas d'aluminium et de brome, et je les compare avec ceux calculés par le modèle OPA-S (voir section 3.6.2).

4.1 Introduction

Nous souhaitons mettre en place une expérience de spectroscopie d'absorption de rayonnement X pour sonder des plasmas denses produits par interaction laser-matière. En effet, les propriétés radiatives des plasmas denses sont importantes pour la physique de l'intérieur des étoiles (Turck-Chieze et al., 2004) et les plasmas de fusion par confinement inertiel (Lindl et al., 2004).

La figure 4.1 présente un diagramme densité-température des plasmas denses d'aluminium (Lee et al., 2003), sur lequel est indiqué la région correspondant à la *WDM*. Dans cette ré-

gion, le plasma est dense ($0,01 - 10 \text{ g/cm}^3$) et relativement chaud ($1 - 10 \text{ eV}$). Le paramètre de couplage Γ , défini comme le rapport entre l'énergie potentielle inter-atomique et l'énergie thermique, est proche de 1. Il est aussi indiqué la région où la dégénérescence devient importante, à droite de la ligne correspondant à un potentiel chimique nul ($\mu = 0$).

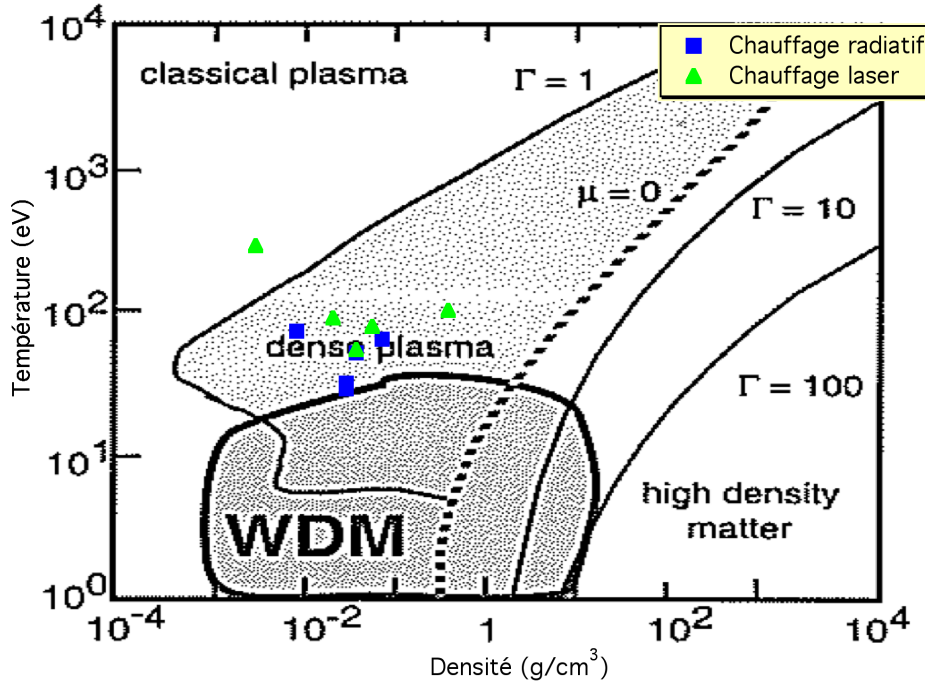


Figure 4.1 – Diagramme densité-température présentant la région définie comme la *warm dense matter* pour l'aluminium (figure provenant de Lee et al. 2003). Les points présentent des mesures d'absorption pour un plasma d'aluminium par chauffage radiatif (carrés bleus), et par chauffage laser (triangles verts).

Depuis de nombreuses années ont été réalisées des expériences de spectroscopie d'absorption dans les plasmas denses et chauds, pour mesurer les coefficients de photoabsorption afin de tester les modèles théoriques. Pour cela, il existe différentes méthodes pour produire ces plasmas, comme le chauffage par laser et le chauffage radiatif. Cette dernière méthode assure un chauffage uniforme à des températures de 10 à 80 eV et des densités allant de 0,001 à 0,01 g/cm^3 dans des conditions proches de l'équilibre thermodynamique local (ETL), (Renaudin et al., 2006; Chenais-Popovics, 2002, et références incluses).

Sur la figure 4.1 sont également représentés quelques points correspondant aux mesures d'absorption de l'aluminium en utilisant le chauffage radiatif (carrés bleus) effectuées par (Rochau et al., 2005; MacFarlane et al., 2002; Perry et al., 1996; Winhart et al., 1995, 1996), et en utilisant le chauffage laser (triangles verts) effectuées par (Zeng et al., 2000; Chenais-Popovics et al., 1990; Back et al., 1992; Perry et al., 1991; Balmer et al., 1989).

Les mesures effectuées par chauffage radiatif et par chauffage laser se situent à des tempé-

ratures relativement élevées, alors que comme nous le verrons par la suite, nos mesures se situent dans la région de la *warm dense matter*.

Avantage du chauffage laser en impulsion sub-picoseconde

L'utilisation d'impulsion laser sub-picoseconde permet de produire des plasmas de plus haute densité à des températures de l'ordre de la dizaine d'électronvolt ayant un minimum de gradient. L'interaction laser-solide étant très brève, la cible est chauffée instantanément. Il n'y a pas ou très peu de mouvement hydrodynamique du plasma pendant l'interaction avec le laser. Quand une impulsion laser sub-picoseconde irradie une feuille très mince (quelques dizaines de nanomètres) avec une intensité de l'ordre de $10^{14} - 10^{16}$ W/cm², le chauffage en surface de la feuille est suivi par une conduction thermique rapide et produit un plasma de haute densité et de température modérée. Ensuite, le plasma se détend et se refroidit (Blancard & Faussurier, 2004, 2003; Stewart & Pyatt, 1966). Ces plasmas ont des durées de vie très courtes, les parties denses et chaudes sont transitoires, et ne sont présentes que pendant quelques dizaines de picoseconde.

De la même manière, une source brève de rayonnement X, d'une durée de quelques picosecondes émettant dans la gamme du keV, peut être générée en irradiant un matériau de numéro atomique élevé avec une impulsion laser sub-picoseconde (Chenais-Popovics et al., 2001; Talman, 1989). Elle permet de réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption pour étudier les opacités spectrales de plasmas denses en régimes transitoires.

Plasma étudié

Nous avons étudié deux plasmas d'éléments atomiques différents, l'aluminium ($Z_{Al} = 13$) et le bromure de potassium (KBr, $Z_K = 19$ et $Z_{Br} = 35$), dans la gamme d'énergie comprise entre 1480 et 1600 eV. Cette gamme permet d'observer les transitions 1s-2p et 1s-3p des différents ions d'aluminium (couche K) et les transitions 2p-3d du brome (couche L).

La physique atomique est très différente pour l'aluminium et le brome. Le premier étant un élément léger, on observe un spectre de raies (section 2.1.1). Le second étant un élément plus lourd, il existe beaucoup de transition et l'on observe un spectre large dû au grand nombre de transitions non résolues.

Dans le régime étudié, le plasma d'aluminium est faiblement ionisé et les effets de densité sur les profils de raies ne sont pas négligeables. Ces effets sont difficiles à traiter et complexifient le calcul de l'absorption spectrale. Par exemple, l'abaissement du potentiel d'ionisation modifie la balance d'ionisation, et l'ionisation par pression tend à délocaliser les orbitales atomiques

(section 2.2.2). Dans la gamme spectrale étudiée, nombreuses sont les raies d'absorption $1s-np$ qui se superposent dans le seuil K de photoionisation. Les données expérimentales que nous avons obtenues permettent de tester la fiabilité des approximations qui ont été proposées pour prendre en compte les effets de densité dans les calculs d'opacité spectrale.

Quels sont les défis expérimentaux ?

Pour mesurer les spectres d'émissions en termes d'opacité spectrale, le système expérimental doit permettre (1) de mesurer les signaux d'absorption et de référence, c'est-à-dire le spectre d'absorption du plasma ainsi que le spectre d'émission de la source de rayonnement X, et (2) de caractériser le milieu sondé. En effet, il est très important de connaître au mieux le plasma sondé, afin de limiter le nombre de paramètres libres des simulations.

Le premier point est relativement simple à mettre en oeuvre. Il consiste à mesurer deux spectres l'un à la suite de l'autre, avec et sans le matériau sondé. Le second point est plus difficile. Il faut prendre en compte les paramètres du milieu sondé, comme les gradients spatiaux, selon les axes longitudinal et radial, et le gradient temporel, correspondant à l'évolution du plasma pendant la durée d'émission de la source de rayonnement X.

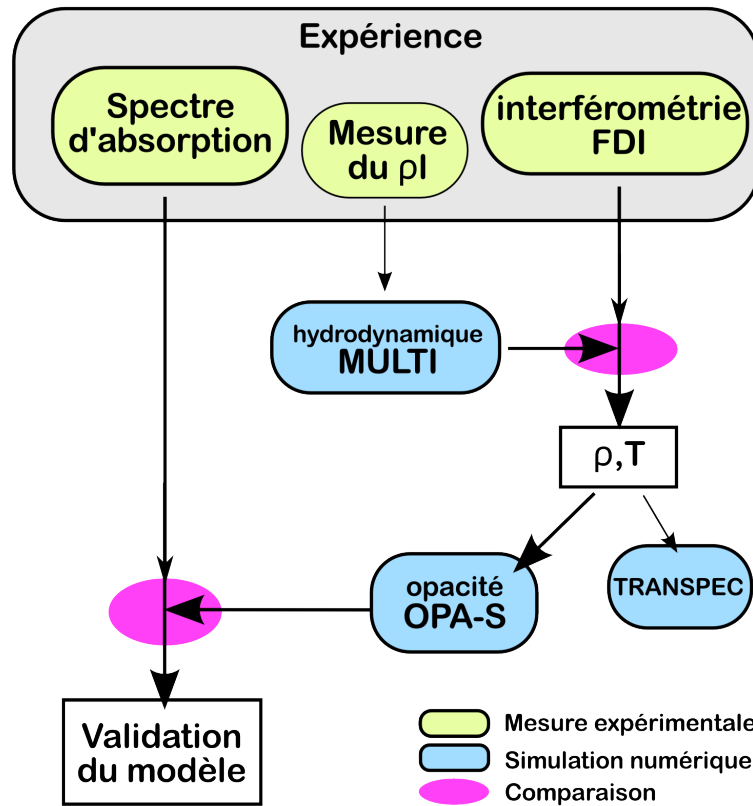


Figure 4.2 – Schéma présentant les différentes étapes de l'analyse des résultats.

Pour plus de clarté sur les différentes étapes de l'analyse des résultats, la figure 4.2 présente les relations entre les différents points.

Les données expérimentales permettent de mesurer la densité surfacique ρ_l (section 4.2.4). Celle-ci est utilisée comme donnée d'entrée des simulations hydrodynamiques du code MULTI-FS (section 3.5). Les résultats de la simulation sont comparés aux mesures d'interférométrie FDI (section 3.4), afin d'évaluer les paramètres thermodynamiques du plasma sondé, indépendamment des spectres mesurés. Ceux-ci sont utilisés comme données d'entrée de simulations de physique atomique, pour (1) évaluer l'influence des effets temporels du plasma à l'aide du code collisionnel-radiatif TRANSPEC (section 3.6.1), et (2) comparer les spectres expérimentaux à ceux calculés à l'aide du code d'opacités spectrales OPA-S (section 3.6.2).

4.2 Caractéristiques expérimentales

Cette section présente les caractéristiques expérimentales de l'expérience d'absorption de rayonnement X par un plasma. Tout d'abord, la géométrie des différents faisceaux lasers et les principaux éléments du montage sont décrits. Puis la configuration des échantillons utilisés, d'aluminium ou de bromure de potassium, sont détaillés. Ensuite, différents spectres de la source de rayonnement X sont présentés afin de montrer la répétitivité de notre source. Enfin, cette section termine en expliquant comment notre système permet de mesurer la densité surfacique du plasma d'aluminium sondé.

4.2.1 Géométrie

Cette expérience a été réalisée au LULI sur la chaîne laser 100 TW (section 3.1.2), utilisant deux faisceaux ayant une durée de 400 fs. La figure 4.3 présente les principaux éléments du montage expérimental utilisé.

Une première impulsion laser, la pompe ($\sim 0,3$ J - $1,06 \mu\text{m}$), chauffe une feuille mince du matériau à sonder, de l'aluminium (Al) ou du bromure de potassium (KBr), déposée sur un substrat de 25 nm de nitrure de silicium (Si_3N_4). Le faisceau laser est diaphragmé et utilise une très faible portion de l'énergie disponible. En utilisant le laser très loin de ses performances ultimes, il est possible d'obtenir une tache focale très uniforme. Le contraste en intensité de la pré-impulsion a été mesuré à 10^{-7} à la fréquence fondamentale (contraste nanoseconde). Une deuxième impulsion laser, la sonde (~ 8 J - $0,53 \mu\text{m}$ - quelques 10^{19} W/cm²), est focalisé sur une cible de samarium (Sm) en utilisant une parabole hors-axe ($f/D = 3$), et permet de produire la source de rayonnement X qui va sonder notre échantillon. Le délai entre les faisceaux laser de pompe et de sonde est mesuré avant chaque tir avec une

incertitude de quelques picosecondes. Une troisième impulsion laser (35 ps - $1,06 \mu\text{m}$) est focalisée sur la face arrière de la cible, et permet de réaliser un diagnostic d'interférométrie dans le domaine des fréquences (FDI, voir section 3.4). Ce faisceau est réfléchi à 47° par rapport à la normale à la cible.

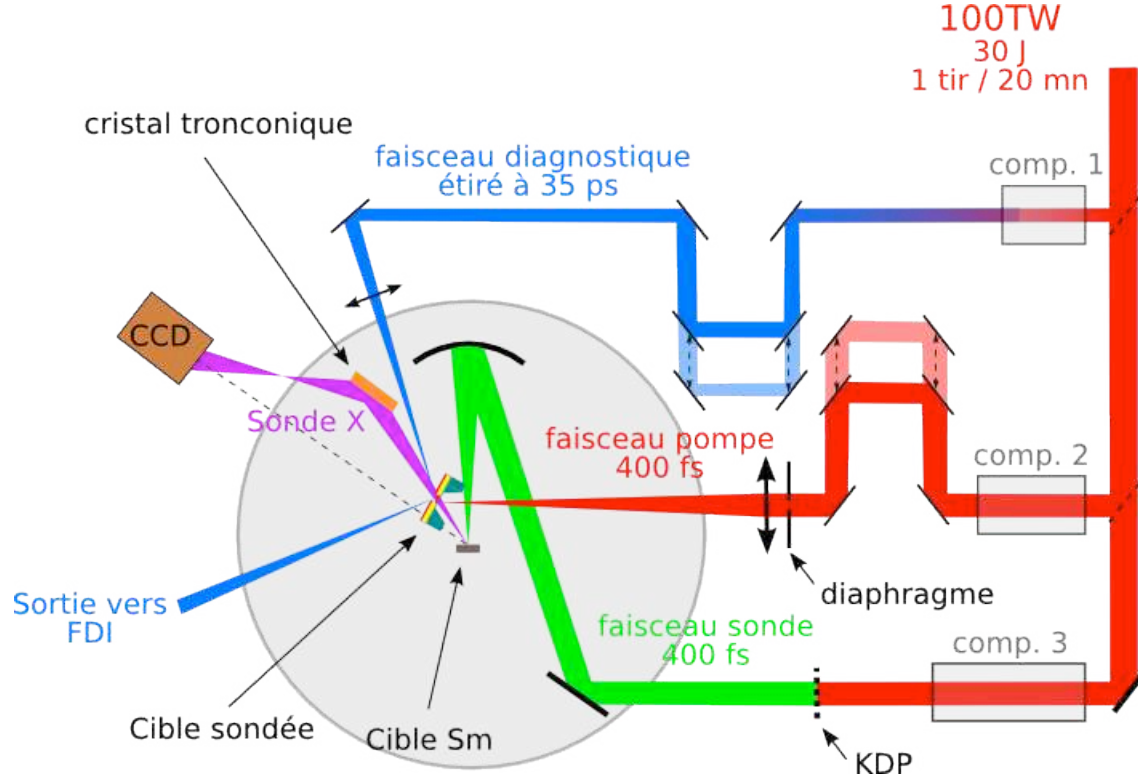


Figure 4.3 – Schéma présentant les principaux éléments du dispositif expérimental : le faisceau pompe, le faisceau sonde, les cibles, le spectromètre (cristal et CCD), et le faisceau diagnostique.

La synchronisation temporelle des deux faisceaux courts (la pompe et la sonde) est réalisée en remplaçant la cible par une lame de verre, permettant de rendre les deux faisceaux colinéaires, et en utilisant tout d'abord une caméra à balayage de fente pour la synchronisation picoseconde, puis en réalisant des interférences spectrales et spatiales entre les deux faisceaux. La précision de la synchronisation est de l'ordre de la centaine de femtosecondes, mais nos mesures effectuées ont montré une dérive lente de quelques picosecondes.

Le spectre de transmission est mesuré à l'aide d'un cristal tronconique (section 3.2.1), couplé à une caméra CCD 16 bits (section 3.3.1). Ce spectromètre est conçu pour des énergies comprises entre 1470 et 1610 eV. De plus, une caméra à sténopé permet d'imager et de mesurer la taille de la source de rayonnement X émis par le plasma de samarium.

Pour obtenir l'absorption du plasma sondé, il est nécessaire de mesurer le signal de référence I_0 . Celui-ci est obtenu en mesurant le spectre émis par la cible de samarium (en l'absence de la cible sondée).

4.2.2 Structure de l'échantillon sondé

La figure 4.4 présente un schéma de l'échantillon utilisé, incluant les trois faisceaux interagissant avec la cible, qui sont le faisceau de chauffage (la pompe), la sonde de rayonnement X, et le faisceau du diagnostic FDI. La cible est constituée d'un substrat de silicium, recouvert d'une couche de 25 nm d'épaisseur de nitrure de silicium (Si_3N_4), d'un sténopé en or, et finalement, d'un dépôt d'aluminium, ou d'un dépôt de bromure de potassium, ce dernier étant recouvert d'une couche de carbone de quelques dizaines de nanomètres.

Le sténopé en or permet l'alignement du côté du faisceau FDI. La couche de Si_3N_4 permet d'obtenir une cible mince très plane, de bonne réflectivité spéculaire, ayant une planéité bien meilleure qu'une feuille d'aluminium auto-supportée. En effet, ce paramètre est important pour la mesure de la phase du faisceau réfléchi sur la face arrière (côté FDI).

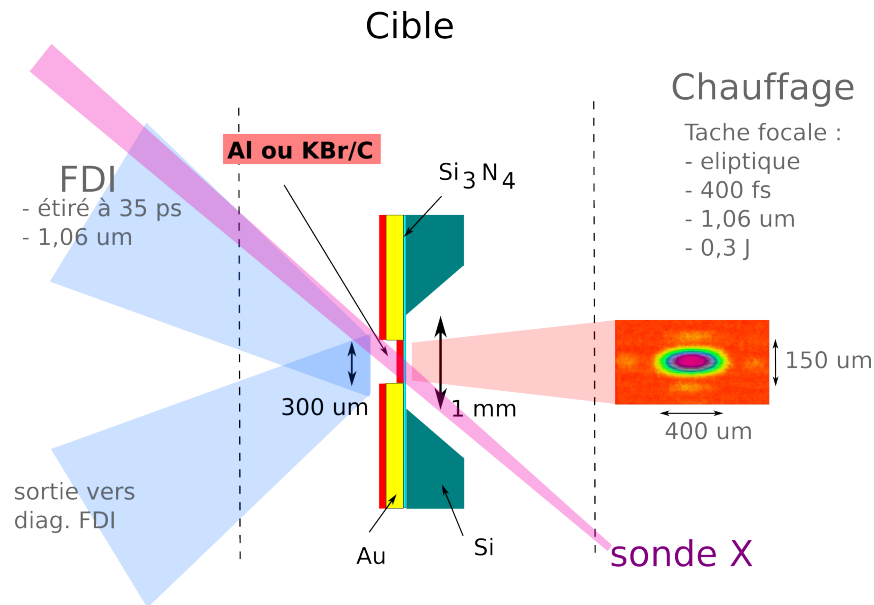


Figure 4.4 – Schéma représentant la cible et les trois faisceaux en interaction avec elle : le faisceau de chauffage, le faisceau diagnostic, et la sonde de rayonnement X.

La cible est chauffée par une impulsion laser d'environ 0,3 J pendant 400 fs, à 1,06 μm . Ce faisceau est focalisé sur la face avant de l'échantillon (côté du Si_3N_4) afin de limiter les gradients longitudinaux dans l'élément sondé. En effet, le Si_3N_4 n'absorbe pas le rayonnement X dans la gamme étudiée, et la détente du plasma est plus importante du côté du laser de chauffage. Le faisceau diagnostic est focalisé sur la face arrière de la cible avec un angle de 48°. De la même manière, la couche de carbone présente sur les cibles de KBr permet de limiter les gradients longitudinaux dus à l'expansion de la cible en face arrière.

La cible est positionnée avec un angle de 27° par rapport au rayonnement X. Cela permet d'améliorer la qualité du signal mesuré, en augmentant le nombre d'atomes absorbeurs. En

effet, pour une cible d'aluminium de 40 nm d'épaisseur, le seuil d'absorption froid du seuil K est de 4 % pour une incidence normale, et de 8 % pour un angle d'incidence de 27°.

Dans la suite, je présenterai les résultats pour trois cibles différentes :

- 46 nm d'Al
- 80 nm d'Al
- 50 nm de KBr recouverte de 20 nm de C

4.2.3 Caractérisation de la source X

Nous avons utilisé une source de rayonnement X, produite par un plasma de samarium ($Z = 64$). Comme nous l'avons vu précédemment (section 2.1.1), le rayonnement émis par des matériaux de numéro atomique élevé est composé de nombreuses transitions non résolues. Le samarium est l'élément adapté émettant un rayonnement X continu dans la gamme d'énergie étudiée.

L'impulsion laser focalisée est doublée en fréquence à l'aide d'un cristal non linéaire de KDP. L'utilisation d'une impulsion à 2ω permet d'augmenter le contraste en éliminant le piédestal de l'impulsion (dû à l'ASE¹) qui cause le préchauffage de la cible. Ainsi, l'interaction est réalisée avec une cible non détendue, c'est-à-dire sans pré-chauffage. De plus, l'absorption est réalisée à plus haute densité. En effet, le laser est absorbé près de la densité critique, qui est 4 fois plus forte lorsque la longueur d'onde est 2 fois plus faible, et le plasma sera plus émissif. La détente étant très rapide, l'émission sera très courte, de quelques picosecondes.

Une précédente campagne expérimentale sur la même installation laser (Chenais-Popovics et al., 2004), a montré que la durée d'émission de la source de samarium était de 4 picosecondes. La figure 4.5-a présente un spectre brut de samarium résolu spectralement et temporellement, obtenu à l'aide d'une caméra à balayage de fente. Des filtres de différentes épaisseurs étaient placés le long de l'axe des longueurs d'onde. La figure 4.5-b présente 3 coupes à différentes longueurs d'onde, pour les 3 épaisseurs de filtres. On remarque que la durée d'émission est différente en fonction de l'intensité du signal. En effet, lorsque la caméra est saturée (trop de photons), elle élargit la trace sans une grande modification du temps de montée du signal. La trace non saturée a une largeur à mi-hauteur de 4 ps (carré bleu).

La figure 4.5-c présente le spectre d'émission de la source de samarium obtenu lors de notre campagne. Le spectromètre permet de mesurer des images bi-dimensionnelles, ayant une dimension spatiale et une dimension spectrale (section 3.2.1). L'intensité n'est pas homogène suivant les deux directions, et l'on remarque des traces qui sont dues aux changements de

¹De l'acronyme anglais, *Amplified Stimulated Emission*.

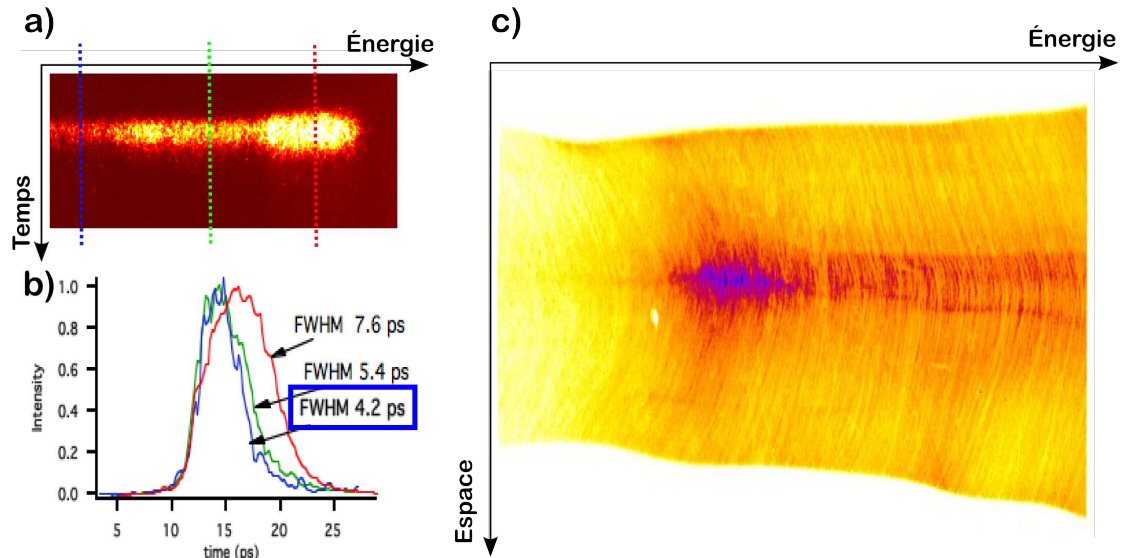


Figure 4.5 – a) Spectre brut de l'émission d'un plasma de samarium résolue spectralement et temporellement, pour 3 épaisseurs de filtres différents. b) 3 coupes le long de l'axe temporel pour les 3 épaisseurs de filtres. c) Spectre brut résolu spatialement et spectralement, obtenu lors de notre campagne expérimentale.

réflectivité du cristal, et à ses défauts. Ces derniers ne sont pas trop gênants car en prenant le rapport entre deux spectres (image à image), il est possible d'éliminer complètement ces deux phénomènes.

Pour extraire l'absorption du plasma, on mesure préalablement le spectre de référence, sans échantillon sondé. Pour évaluer la variation de la source de rayonnement X tir à tir, la figure 4.6 présente quatre spectres références (n^{os} 105, 115, 116, et 125) divisés par un cinquième (n^o 129), mesurés à deux positions spatiales différentes, au centre et sur un bord. Si les tirs étaient parfaitement reproductibles, le rapport devrait être toujours égal à 1.

Spatialement, les courbes se superposent parfaitement. Par contre deux points sont remarquables : premièrement, le rapport n'est pas toujours constant en fonction de la longueur d'onde ; deuxièmement la valeur moyenne est souvent différente de 1. Ils sont dus à la différence de paramètres lasers et/ou d'alignement entre chaque tir. Il faut donc prendre en compte ces deux points dans l'analyse de la transmission du plasma sondé.

L'erreur due à la fluctuation tir à tir de la source de samarium peut être estimée à quelques pourcents.

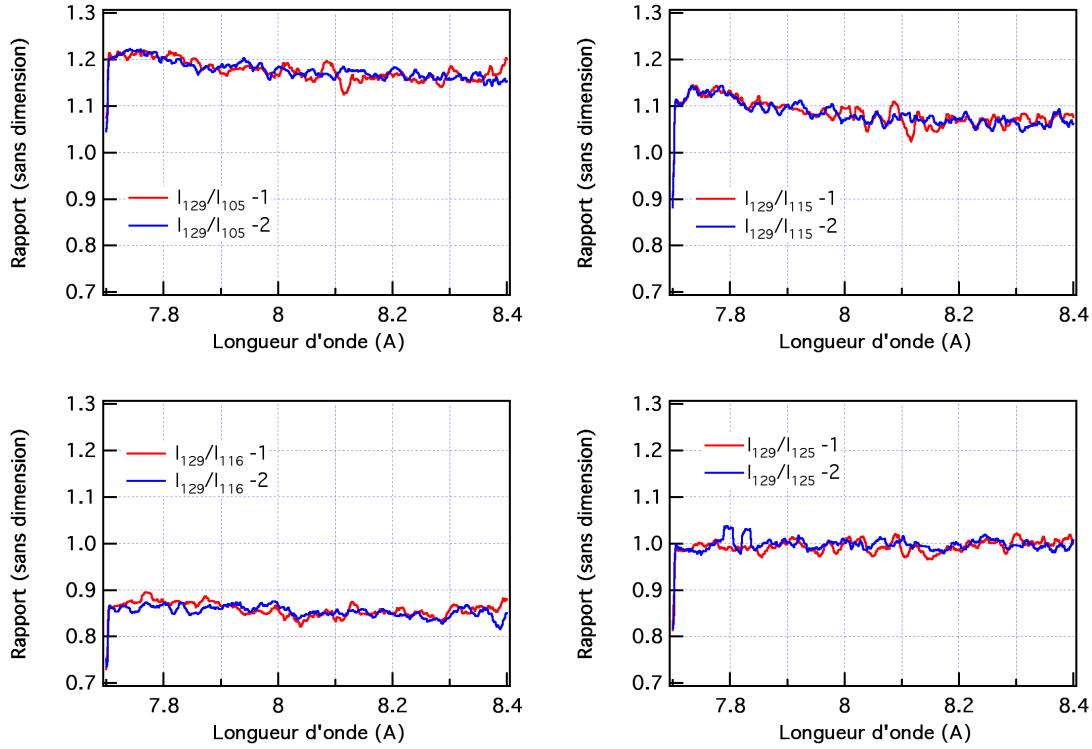


Figure 4.6 – Courbes présentant le rapport entre différents spectres de la source de rayonnement X. Un tir (n° 129) est comparé à quatre autres (n° s 105, 115, 116, et 125), pour deux positions spatiales : au centre (courbes rouges) et sur un bord (courbes bleues).

4.2.4 Mesure de la densité surfacique

Un des paramètres clés de notre expérience est la possibilité de mesurer la densité surfacique nominale de la feuille d'aluminium sondée. En effet, notre spectromètre permet d'obtenir une résolution spatiale de l'absorption du rayonnement X, ce qui permet de mesurer le spectre du plasma froid sur les bords de la tache focale (du faisceau de chauffage).

Un exemple d'un spectre d'absorption est présenté dans l'encart de la figure 4.7. Ce type de mesure sera expliqué plus en profondeur dans la section 4.13. En fonction de la dimension spatiale, le spectre dépend de l'intensité du faisceau de chauffage (représenté en bleu sur la figure). Sur le bord de la tache focale, on mesure le spectre d'absorption froid. Différentes coupes sont également présentées sur la figure (points noirs) pour des cibles d'aluminium d'épaisseur identique. Celles-ci sont comparées à la courbe rouge, qui présente l'absorption théorique de l'aluminium froid prévue par les tables de Henke 2.1.2. La courbe théorique donnant le meilleur ajustement a été calculée pour une épaisseur de 45 nm à la densité du solide (i.e. $2,7 \text{ g/cm}^3$). Ce qui correspond à une densité surfacique de $12,1 \pm 2 \text{ } \mu\text{g/cm}^2$.

Au niveau du seuil d'absorption, entre 1560 et 1580 eV, on remarque une différence notable

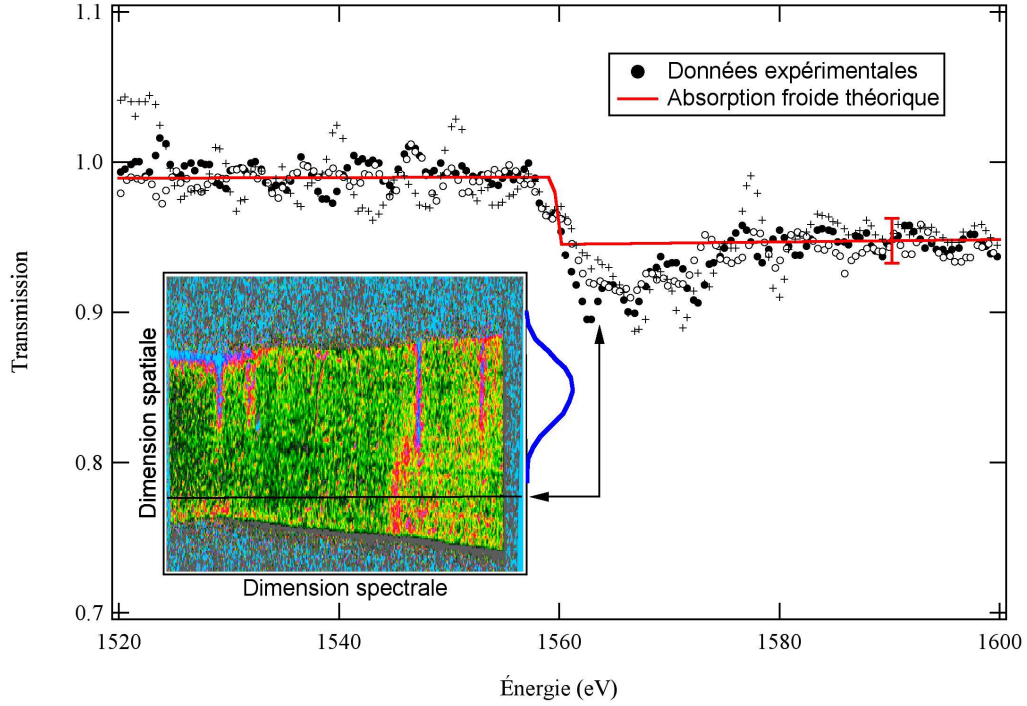


Figure 4.7 – Mesure de l’absorption froide sur les bords de la tache focal. On en déduit une densité surfacique de $12,1 \pm 2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

entre l’absorption mesurée et celle calculée. En effet, l’absorption théorique est simplifiée et ne prend pas en compte de nombreux effets, comme l’influence des plus proches voisins qui modifie la structure des seuils d’absorption. Notre comparaison reste cependant valable en ce situant relativement loin du seuil, et nous permet de mesurer la densité surfacique.

Les cibles sont fournies avec une épaisseur nominale de 46 nm. Il faut toutefois signaler que le dépôt est généralement mesuré en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ et le fournisseur suppose une densité solide. En réalité, la densité est certainement légèrement plus faible, dû à la technique de dépôt. Quoi qu’il en soit, notre système expérimental ne permet de mesurer que la masse surfacique, qui est très proche de la valeur nominale.

4.3 Caractérisation du plasma

La caractérisation du plasma est cruciale pour notre expérience. En effet, il est nécessaire de mesurer de manière indépendante les paramètres hydrodynamiques du plasma sondé, pour comparer les spectres d’absorption avec le calcul théorique qui dépend de ces paramètres.

Nous avons utilisé le diagnostic FDI, qui permet de mesurer la position de la densité critique en fonction du temps (voir paragraphe 3.4). Ensuite, l’évolution de cette position est com-

parée avec celle calculée par un modèle hydrodynamique simple, qui calcule l'évolution des paramètres thermodynamiques du plasma. De cette manière, nous obtenons toute l'histoire de notre plasma sondé. Finalement, nous étudions les effets temporels du plasma. C'est-à-dire que nous évaluons si le plasma sondé est stationnaire, ce qui est une hypothèse du modèle OPA-S (section 3.6.2) permettant de comparer les spectres théoriques et expérimentaux.

4.3.1 Mesure indirecte de la densité et de la température

Pour déterminer les paramètres thermodynamiques du plasma sondé, nous utilisons les résultats du diagnostic FDI. Celui-ci mesure la phase et l'absorption du faisceau réfléchi par la surface arrière du plasma. Elle est ensuite comparée avec celle calculée à l'aide des paramètres de la simulation hydrodynamiques MULTI-FS. Finalement, nous récupérons les densités et les températures correspondant aux instants où le plasma est sondé.

4.3.1.1 Validation du modèle 1D MULTI-FS

La figure 4.8 présente un résultat type obtenu avec le diagnostic FDI : la phase est reconstruite (a), à partir de l'image brut (b). Cette figure présente l'évolution de la phase du faisceau diagnostic, réfléchi par la face arrière d'un plasma d'aluminium, en fonction du temps et de l'espace. On remarque qu'au centre de la tache focale, la phase ne subit pas de grande variation en fonction de l'espace, l'expansion est essentiellement mono-dimensionnelle, et le plasma reste homogène sur une assez large dimension spatiale. Il est possible de conclure qu'il n'y a pas d'effet bi-dimensionnel sur la détente du plasma pendant la durée du sondage ($< 35\text{ps}$).

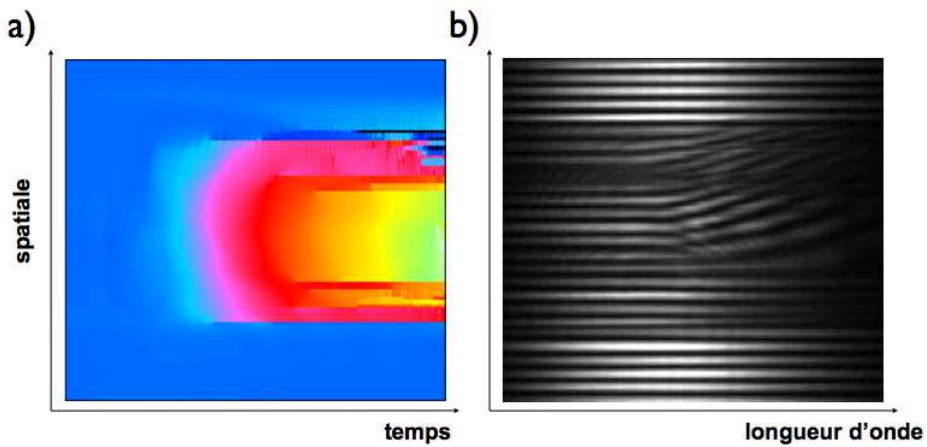


Figure 4.8 – Reconstruction de la phase expérimentale du faisceau sonde (a) à partir de l'image spatio-spectrale obtenue à l'aide du diagnostic FDI (b).

Pour déduire les paramètres hydrodynamiques du plasma, nous avons utilisé le modèle hydrodynamique lagrangien mono-dimensionnel MULTI-FS (section 3.5). Celui-ci permet de simuler l'interaction laser plasma, et de calculer à partir des valeurs thermodynamiques l'évolution de la phase, et de la comparer avec celle obtenue expérimentalement.

4.3.1.2 Paramètres de la simulation

La simulation numérique demande plusieurs paramètres d'entrée, comme l'énergie et la durée d'impulsion du laser, l'épaisseur et la densité initiales de la cible, et la table d'équations d'état de l'élément simulé. Comme nous l'avons vu dans la section 4.2.4, la masse surfacique est mesurée expérimentalement, ce qui nous permet de déterminer l'épaisseur à utiliser dans notre simulation. Il ne faut pas oublier de prendre en compte l'épaisseur de la couche de nitrure de silicium (25 nm), qui ne participe pas ou très peu à l'absorption du rayonnement X ($\sim 0,005$), mais qui est importante dans l'hydrodynamique du plasma. La durée du laser est mesurée et reste inchangée pendant toute la durée de l'expérience (400 fs). Par contre, il est difficile de mesurer l'énergie du laser, et surtout l'énergie absorbée de façon exacte.

La durée de l'impulsion laser étant très courte, le plasma est chauffé mais ne se détend quasiment pas pendant l'interaction laser-matière. La détente n'a lieu qu'après le chauffage par laser. L'évolution hydrodynamique est essentiellement due à l'énergie absorbée, c'est-à-dire à la température initiale. Il n'y a donc qu'un seul paramètre libre pour la simulation, l'énergie du laser, que l'on varie pour comparer les phases expérimentales et théoriques.

En ajustant l'intensité incidente sur la cible, c'est-à-dire la température initiale, qui influence la vitesse d'expansion, on fait correspondre la phase mesurée avec celle calculée. La figure 4.9 présente 3 comparaisons entre les phases expérimentales et théoriques. La précision de la comparaison entre les deux phases est estimée à $\pm 10\%$ de l'énergie du laser. En effet, pour borner l'évolution de la phase expérimentale (triangles noirs) autour de la phase calculée pour une intensité laser de $9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (courbe noire), il est nécessaire de faire varier cette intensité de $\pm 10\%$ (pointillés noirs). Les variations observées après 15 picosecondes sont simplement dues au fait que pour ces temps-là, la longueur d'onde correspondante est peu intense (voir figure 4.8-b), le bruit est plus important.

Nous avons aussi évalué l'influence de l'équation d'état sur la simulation numérique, en particulier sur l'évolution de la phase du faisceau réfléchi, entre les tables SESAME et QEOS (section 3.5.1.6). La figure 4.10 présente les évolutions de la phase en fonction du temps pour 2 simulations réalisées avec les tables SESAME (triangles noirs) et QEOS (ronds rouges).

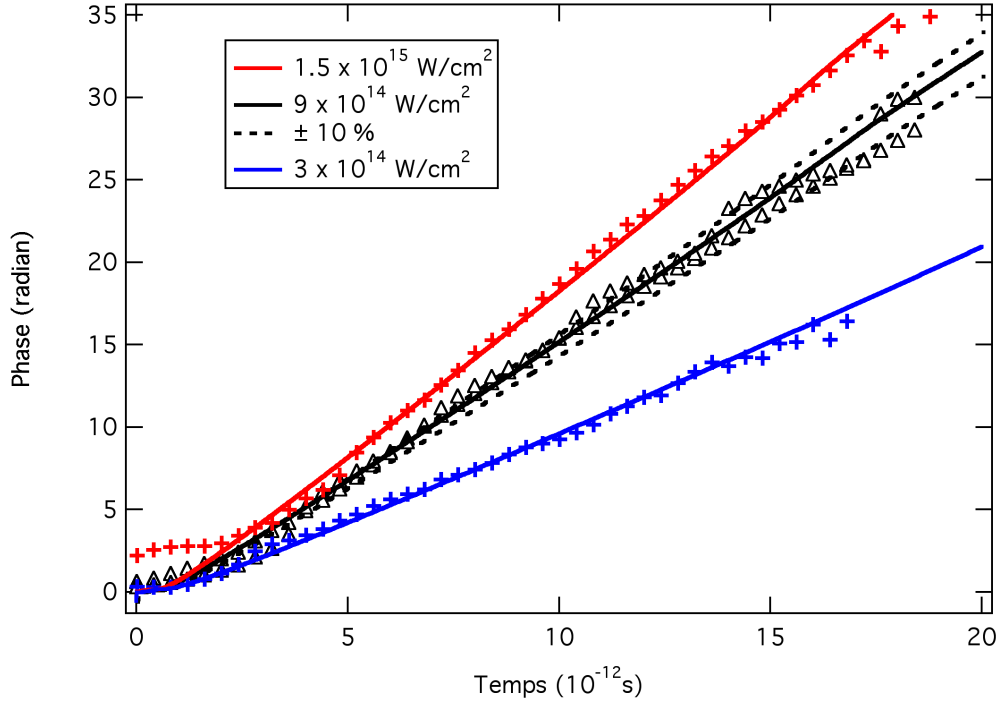


Figure 4.9 – Comparaison entre les phases théoriques et expérimentales pour 3 chauffages différents d'une feuille de 70 nm d'aluminium.

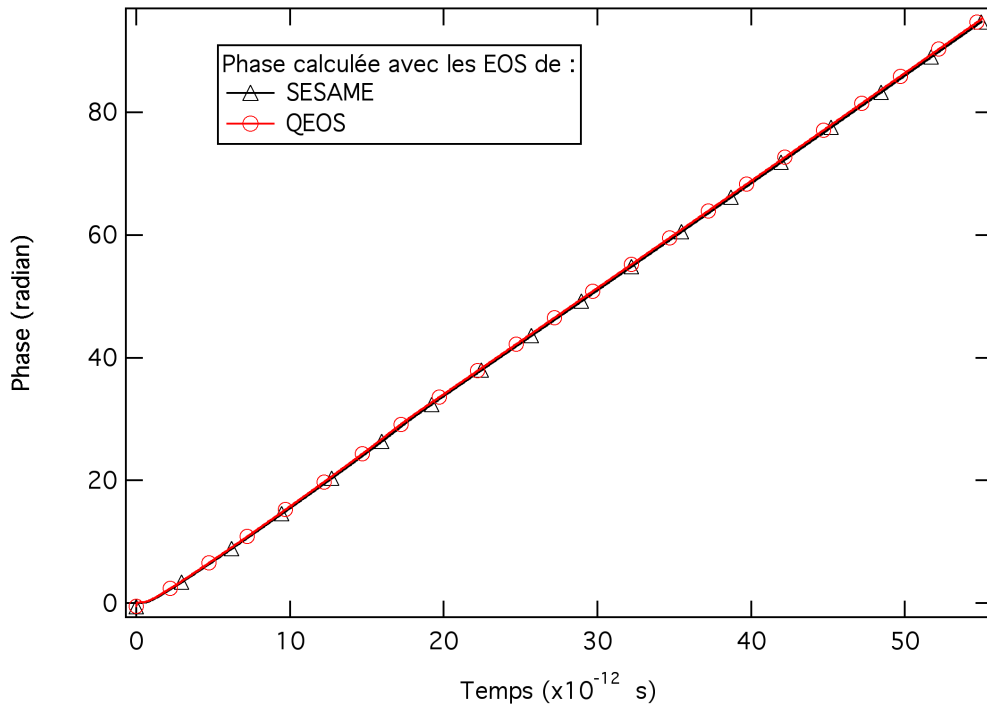


Figure 4.10 – Influence de l'équation d'état, SESAME ou QEOS, sur l'évolution de la phase d'un faisceau réfléchi par le plasma.

Malgré une légère différence dans les paramètres hydrodynamiques calculés pour les 2 tables (paragraphe 3.5.2), les deux évolutions sont quasiment identiques. En effet, en première approximation, la vitesse du point de réflexion v_r du faisceau diagnostique peut être donné par :

$$v_r = c_s \cdot \left[\ln \left(\frac{n_s}{n_r} \right) - 1 \right] \quad (4.1)$$

où $c_s = \sqrt{\frac{Z^* T_e}{m_i}}$ est la vitesse du son, Z^* l'ionisation moyenne, T_e la température électronique, et m_i la masse ionique ; $n_r = n_c \cos^2 \theta$ est la densité du point de réflexion, où n_c est la densité critique, et θ l'angle d'incidence du faisceau diagnostique ; et n_s la densité de solide. La vitesse du point de réflexion ne dépend que de la température initiale, $\lesssim 100$ eV dans les deux cas.

4.3.1.3 Intégration temporelle pendant 4 ps

La figure 4.11 reprend la représentation de la figure 3.18, et présente les couples de densité-température le long de l'axe d'absorption du rayonnement par le plasma pour différents délais après l'impulsion laser de chauffage. Cette simulation est réalisée avec la table d'équation d'état QEOS, une intensité laser de 9×10^{14} W/cm², et une cible d'aluminium de 70 nm d'épaisseur. Pour se faire une autre idée de la détente du plasma de cette simulation, la figure 3.19 présente la densité puis la température en fonction de l'espace et du temps.

Nous avons utilisé une feuille de 70 nm d'épaisseur, ce qui correspond à 45 nm d'aluminium (courbes pleines) et 25 nm de nitrure de silicium (courbes en rouge). En effet, le faisceau laser chauffe toute l'épaisseur de la cible ($\text{Si}_3\text{N}_4 + \text{Al}$), mais l'absorption de rayonnement X ne se fait que dans l'aluminium pour la gamme étudiée. Les paramètres thermodynamiques pouvant contribuer à l'absorption correspondent aux courbes noires.

De plus, la durée de la source du rayonnement X étant de 4 picosecondes, le spectre mesuré par le spectromètre est une intégration de l'absorption par toutes les conditions hydrodynamiques présentes pendant ces 4 picosecondes. Pour un temps donné, on remarque que le plasma d'aluminium est relativement homogène en température. L'intégration temporelle prend en compte essentiellement une variation de la température alors que le gradient spatial correspond à une variation de la densité.

La zone en bleu présente les couples de densité et de température sondés par la source X pour un délai de 5 ± 2 ps entre la pompe et la sonde, correspondant à une sonde de rayonnement X d'une durée de 4 ps. Pour un délai donné entre le faisceau de chauffage et la sonde de

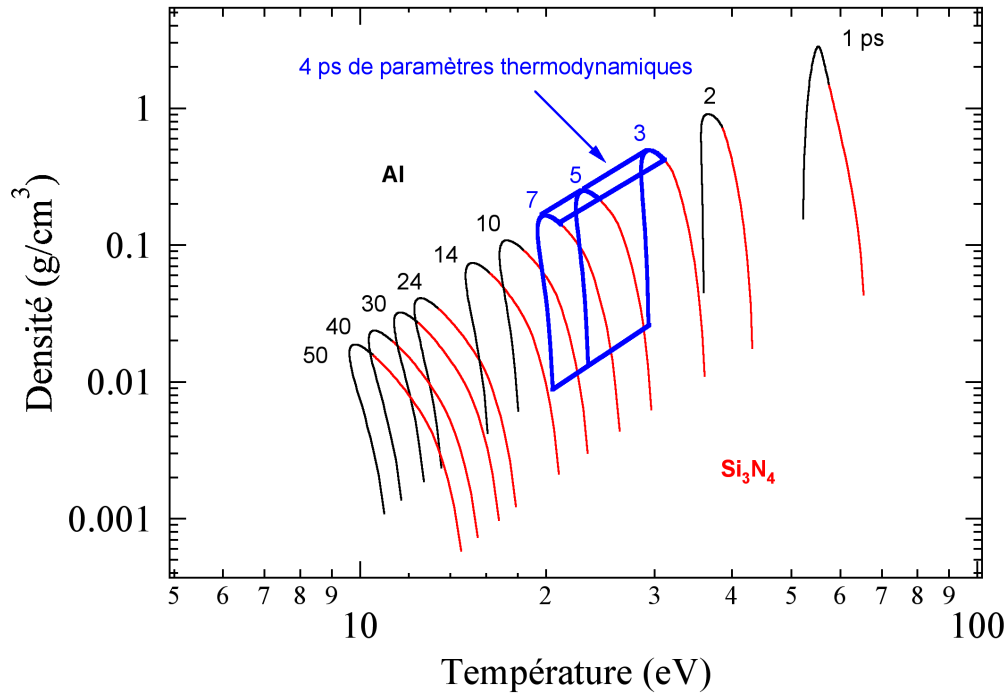


Figure 4.11 – Couples de densité-température le long du plasma calculés par MULTI-FS pour une feuille d'aluminium de 70 nm d'épaisseur. La partie en rouge correspond à l'épaisseur de nitrure de silicium ne contribuant pas à l'absorption de rayonnement X. La zone en bleu représente l'intégration temporelle, due à la durée de la sonde de rayonnement X (4 ps).

rayonnement X, on obtient un ensemble de densité et de température correspondant au spectre mesuré. Ces ensembles sont ensuite utilisés comme données d'entrée pour simuler le spectre théorique.

Pour un délai très court entre la pompe et la sonde, le plasma se détend très vite et les gradients de température sont très importants. Pour les temps tardifs ($\gtrsim 20$ ps), la température reste identique sur 4 picosecondes, il n'y aura plus qu'un effet dû au gradient de densité sur les spectres mesurés pour des longs délais entre la pompe et la sonde.

4.3.2 Effet temporel

Le modèle OPA-S ne permet de calculer l'opacité que de façon stationnaire. Nous avons calculé l'influence des effets hors équilibre sur l'évolution hydrodynamique du plasma. L'évolution temporelle de la charge moyenne et des populations du plasma est calculée avec le code collisionnel-radiatif TRANSPEC (voir paragraphe 3.6.1) comme post-processeur de la simulation hydrodynamique de MULTI-FS. D'une autre façon, nous avons voulu estimer l'influence de la réabsorption du rayonnement au cours du temps sur les populations ioniques.

La figure 4.12 montre l'évolution temporelle du pourcentage relatif des populations ioniques et l'ionisation moyenne, calculée avec TRANSPEC pour deux conditions, stationnaire et instationnaire, en utilisant les données hydrodynamiques de la simulation précédente (70 nm d'Al, $I_{Laser} = 9 \times 10^{14}$ W/cm², voir figure 4.11). Les effets instationnaires ne deviennent négligeables que lorsque la densité du plasma décroît, après 15 ps. À ces temps-là, l'hypothèse de stationnarité conduit à une sous-estimation des fractions ioniques. Il a été montré (Bauche-Arnoult et al., 1982; Audebert et al., 2005) que malgré la rapide évolution temporelle de la température, les états d'ionisation donnés par TRANSPEC sont en bon accord avec l'ionisation moyenne mesurée. Cela suggère que le plasma est proche de l'équilibre thermodynamique local.

On peut donc conclure que nos mesures sont stationnaires pendant environ une quinzaine de picosecondes et peuvent être comparées avec le modèle OPA-S.

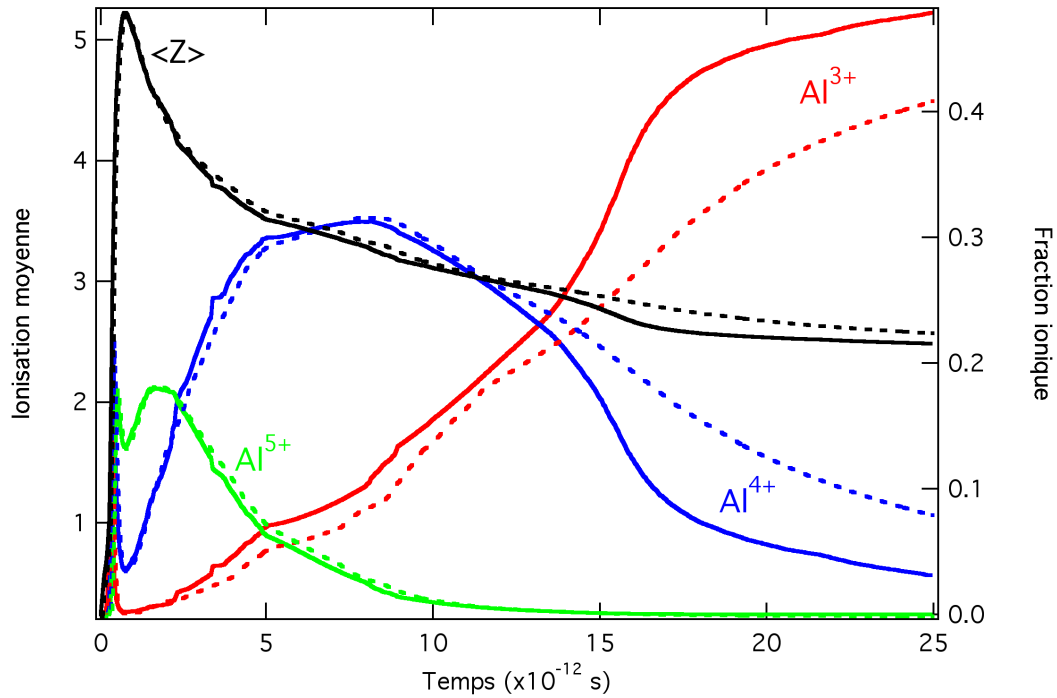


Figure 4.12 – Évolution temporelle des pourcentages des fractions ioniques pour les ions Al³⁺, Al⁴⁺ et Al⁵⁺, et évolution de l'ionisation moyenne $\langle Z \rangle$ calculées avec TRANSPEC dans des conditions instationnaires (courbes en pointillés) et stationnaires (courbes pleines).

4.4 Absorption d'un plasma d'aluminium

Cette section présente différents résultats d'absorption de rayonnement X obtenus à partir d'un plasma d'aluminium. Tout d'abord, une analyse spatiale de deux spectres d'absorption

obtenus dans des conditions différentes est présenté. En observant les raies d'absorption en fonction de la dimension spatiale, correspondant à une intensité laser de chauffage différente, on obtient des informations sur les conditions du plasma. Ensuite, six spectres expérimentaux sont présentés. Ils ont été obtenus avec différents délais entre la pompe (laser de chauffage) et la sonde de rayonnement X. Pour chaque résultat, le diagnostic FDI permet de déduire les densités et les températures des plasmas sondés. Ces paramètres sont ensuite utilisés par le modèle OPA-S pour calculer les spectres d'absorption théorique. Enfin, cette section termine en comparant la gamme de densité-température sondée par nos mesures, à celles effectuées précédemment soit par chauffage radiatif, soit par chauffage laser.

4.4.1 Analyse spatiale de spectres : dépendance en énergie

Les images obtenues par le spectromètre sont bi-dimensionnelles. Elles permettent de résoudre le spectre d'absorption de rayonnement X en fonction de l'espace. Les figures 4.13 et 4.14 présentent deux spectres expérimentaux, obtenus avec des épaisseurs d'aluminium différentes, et pour deux délais entre la pompe et la sonde de rayonnement X.

La figure 4.13 présente la transmission expérimentale d'une feuille d'aluminium d'une épaisseur de 80 nm (déposée sur 25 nm de Si_3N_4), 60 ps après l'impulsion laser de chauffage. (a) représente la coupe de la tache focale du faisceau de chauffage de 150 μm de largeur à mi-hauteur, et (b) le spectre correspondant. On remarque que spatialement l'absorption est différente dans la feuille d'aluminium, correspondant à une différence de l'énergie laser du faisceau de chauffage. Au centre, l'énergie est plus haute, le plasma est plus ionisé, donc plus chaud. Sur les bords, l'énergie laser est moindre, le plasma y est plus froid (moins ionisé).

Sur le spectre brut (b) sont indiqués les centres des 4 coupes utilisées pour tracer les spectres (c). Elles correspondent à quatre intensités laser différentes en fonction de l'espace. La courbe rouge est au centre de la tache focale, donc la plus chaude, et on observe la raie 1s-2p de l'ion Al^{4+} , et les raies 1s-3p des ions Al^{3+} et Al^{2+} . Ensuite, la courbe noire présente un spectre similaire, mais le rapport entre les différentes raies n'est plus le même, car la température est plus faible. Sur la courbe bleue, la raie 1s-2p a complètement disparu, les deux raies 1s-3p des ions Al^{3+} et Al^{2+} ont presque la même intensité, et on voit apparaître la raie 1s-3p de l'ion Al^{1+} . Enfin, sur la courbe verte au bord de la tache focale, on n'observe plus que la raie 1s-3p de l'ion Al^{1+} et le seuil d'absorption froid de l'aluminium.

C'est à partir des courbes correspondant aux bords de la tache focale que l'on peut mesurer la densité surfacique. En effet, il est possible de mesurer l'absorption froide et de la comparer à l'absorption théorique (voir section 4.2.4).

La figure 4.14 présente un second spectre expérimental d'une feuille de 45 nm d'épaisseur (déposée sur 25 nm de Si_3N_4), sondée à un délai de 7 picosecondes entre la pompe et la sonde.

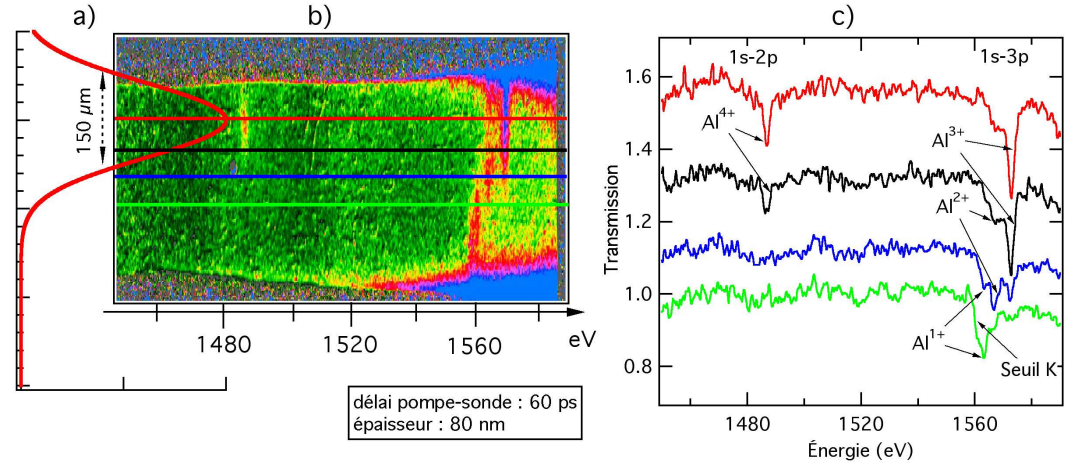


Figure 4.13 – Transmission expérimentale d'un spectre d'absorption d'une feuille d'aluminium d'épaisseur 80 nm, 60 ps après l'impulsion laser de chauffage. (a) représente la coupe correspondant à la tache focale du faisceau de chauffage, (b) le spectre brut, et (c) les 4 coupes correspondant aux 4 positions, soit 4 intensités lasers différentes.

De la même façon, (a) représente la tache focale, (b) le spectre brut et (c) les 4 coupes, centrées comme indiquées sur la figure (b), en fonction de l'espace (donc de l'énergie laser). Ce spectre est globalement plus chaud que le précédent, on n'observe pas de transition 1s-3p, mais les raies d'absorption 1s-2p pour les ions Al^{4+} à Al^{7+} . En effet, la cible étant plus mince et le délai entre la pompe et la sonde plus court, la feuille est plus chauffée, et s'est moins détendue.

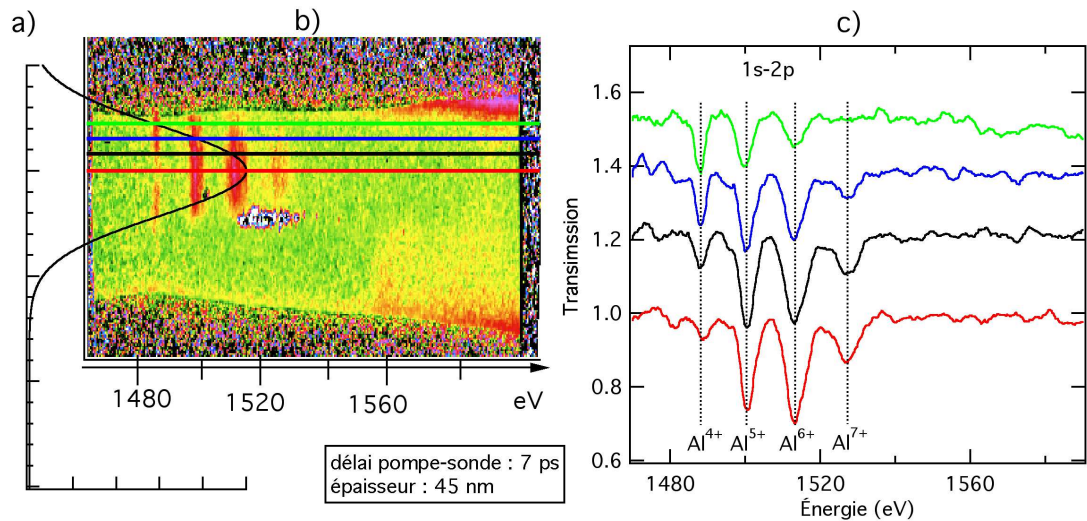


Figure 4.14 – Transmission expérimentale d'un spectre d'absorption d'une feuille d'aluminium d'épaisseur 40 nm, 7 ps après l'impulsion laser de chauffage. (a) représente la coupe correspondant à la tache focale du faisceau de chauffage, (b) le spectre brut, et (c) les 4 coupes correspondant aux 4 positions, soit 4 intensités lasers différentes.

Comme précédemment, on remarque qu'au centre de la tache focale le plasma y est plus ionisé, donc plus chaud. On note que l'ion Al^{4+} est quasiment inexistant et les ions Al^{6+} et Al^{7+} sont relativement abondants, alors que sur le bord (courbe verte) c'est le contraire. L'état d'ionisation y est plus faible, l'ion Al^{7+} n'existe pas.

De plus, il faut noter que l'on pourrait observer les mêmes spectres en modifiant l'énergie du faisceau laser et le délai entre la pompe et la sonde.

4.4.2 Évolution temporelle des spectres

Cette sous-section présente six spectres obtenus pour différents délais entre la pompe (laser de chauffage) et la sonde de rayonnement X. Tout d'abord les résultats obtenus sont décrits, suivit de la présentation des conditions thermodynamiques correspondantes, déduites à l'aide du diagnostic FDI. Ensuite, le calcul OPA-S est décrit en fonction du gradient de densité suivant l'axe d'absorption. Enfin, une comparaison entre les spectres théoriques est présentée, pour ceux obtenus à des temps intermédiaires (spectres rouges), et ceux obtenus aux conditions extrêmes de notre expérience : très tôt ou très tard dans le temps (courbes bleues).

4.4.2.1 Présentation des résultats expérimentaux

La figure 4.15 présente six spectres expérimentaux mesurés pour différents délais entre la pompe et la sonde. Tout d'abord, on remarque que les alignements entre les différents résultats ne sont pas les mêmes. En effet, la position entre la sonde (samarium et pointage laser), la sonde (aluminium et pointage laser), et l'alignement du spectromètre (cristal) varie légèrement. Par contre, il est toujours possible de visualiser le centre de la tache focale de chauffage, correspondant à l'endroit où se situent les états d'ionisations les plus élevés.

On observe les raies d'absorption 1s-2p de l'ion Al^{4+} et/ou de l'ion Al^{5+} au centre du chauffage, alors que les raies d'absorption 1s-3p des ions Al^{3+} et Al^{4+} sont présentes sur une plus large dimension spatiale. De plus, ces raies sont plus ou moins larges. Sur les bords de la tache focale de l'image d), on observe aussi le seuil K et la raie 1s-3p de l'ion Al^{2+} . Au centre du chauffage, les droites représentées permettent de tracer les coupes présentées à figure 4.16.

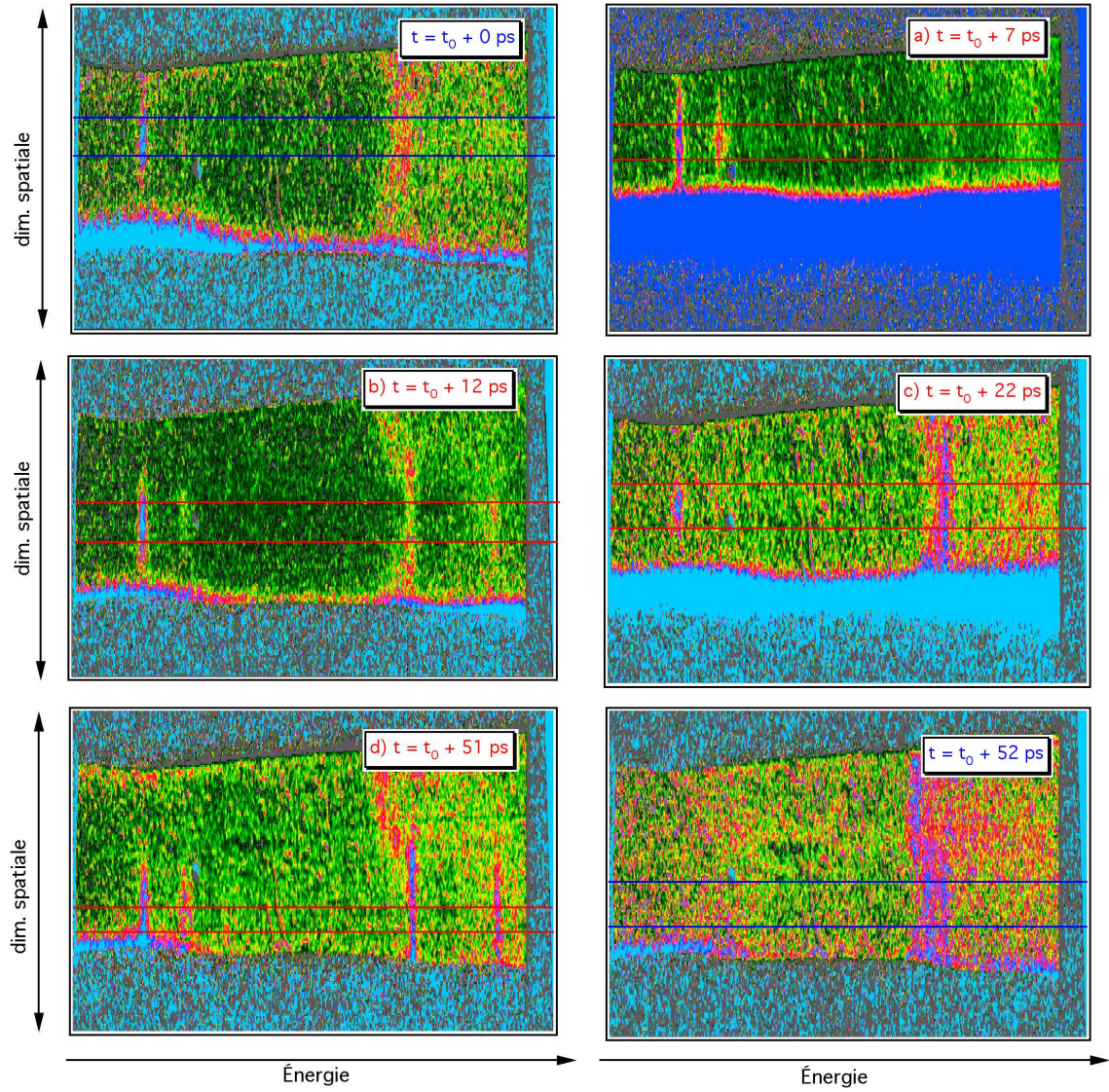


Figure 4.15 – Six spectres expérimentaux, mesurés pour différents délais entre la pompe et la sonde. Les traits représentent les différentes zones permettant de tracer les coupes présentées sur la figures 4.16.

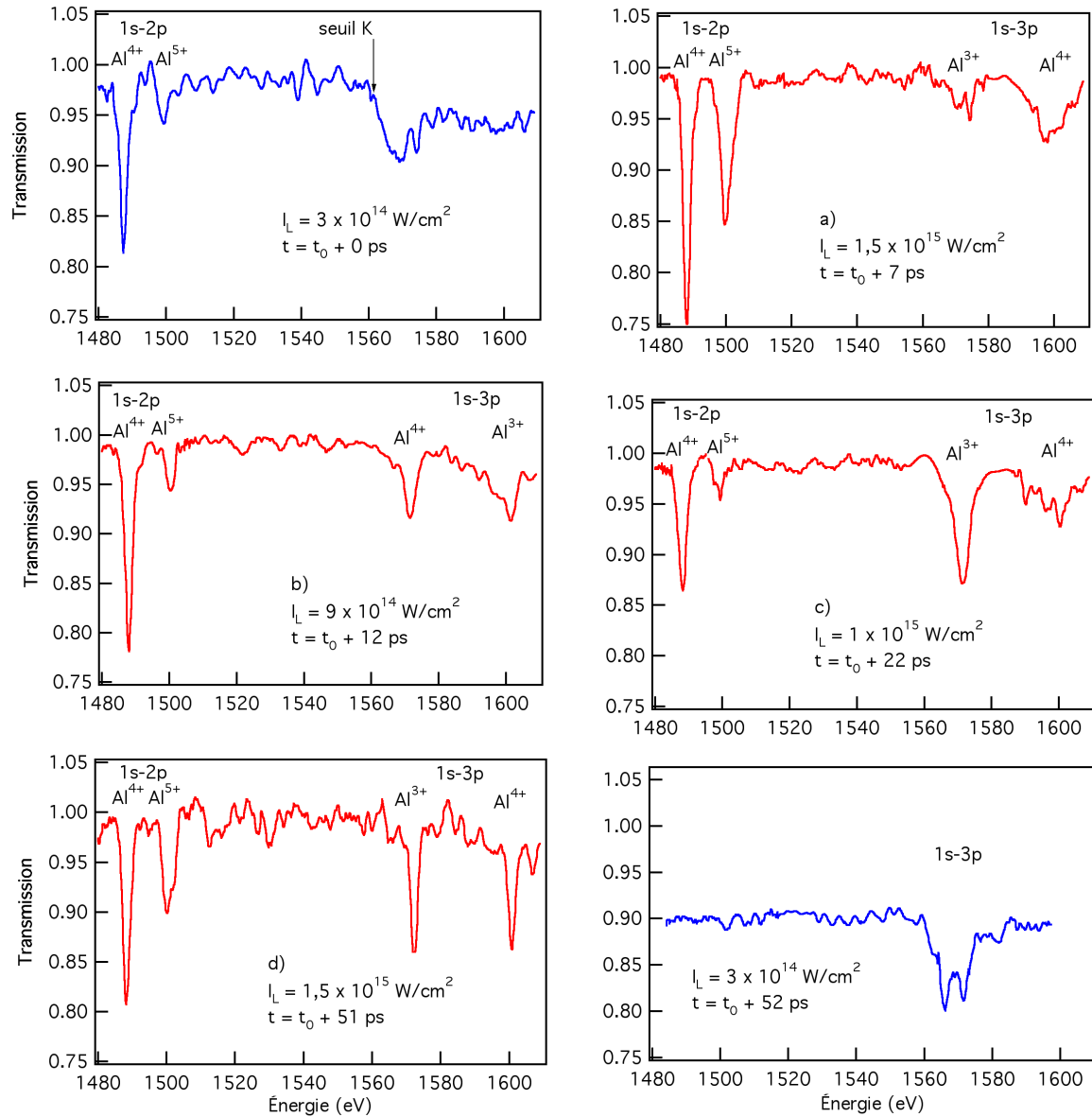


Figure 4.16 – Coupes, au centre de la tache focale du faisceau de chauffage, des spectres de transmission présentés figure 4.15. Sont également indiqués le délai entre la pompe et la sonde, et l'intensité laser de la pompe.

La figure 4.17 présente les chemins thermodynamiques, déduits de l'analyse FDI, en prenant le centre de la tache focale, où le plasma est le plus chaud. Les chemins sont des blocs de 4 ps, correspondant à la durée de la sonde de rayonnement X. Pour les délais courts entre la pompe et la sonde, le plasma se détend rapidement, et la gamme de densité et de température sondée est large. Pour les autres délais, la gamme est réduite. Il ne reste plus qu'un effet dû au gradient de densité le long de l'axe d'absorption du rayonnement X. Les spectres présentés dans la suite ont une gamme de densités et de températures variant respectivement entre 10^{-3} et 1 g/cm^3 et entre 12 et 30 eV.

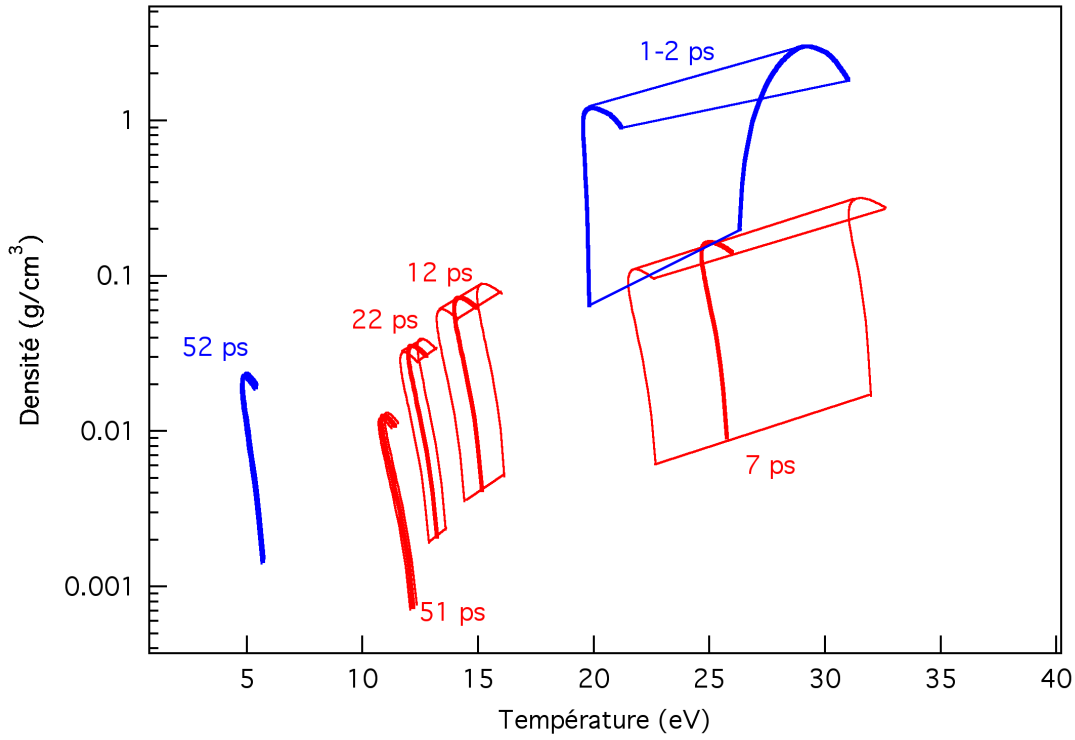


Figure 4.17 – Couples de densité-température le long de l'axe d'absorption du rayonnement X du plasma pour différents temps après le faisceau de chauffage ($t_0 + \Delta t$) du plasma d'aluminium, correspondant aux spectres figures 4.16. Les simulations MULTI-FS ont été réalisées avec une épaisseur de 45 nm d'aluminium déposé sur un substrat de 25 nm de Si_3N_4 , irradié par une intensité laser (I_{laser}). Le Si_3N_4 ne contribue pas à l'absorption du rayonnement X et n'est pas montré. Pour chaque temps, on présente la gamme de densité et de température sondée pendant 4 ps.

4.4.2.2 Présentations des spectres théoriques

L'absorption du rayonnement X se fait sur toute la longueur du plasma. Cela implique comme principal effet que l'absorption mesurée mélange des densités, qui sont différentes d'un ordre de grandeur environ. De plus, la source dure 4 ps, ce qui a comme effet principal d'intégrer des plasma de différentes températures. Ce dernier effet est négligeable pour des longs délais entre la pompe et la sonde.

Pour réduire le temps de calcul, on moyenne les couples de densité-température le long de l'axe d'absorption. C'est-à-dire que pour chaque temps, les 70 cellules de la simulation sont réduites à 10 macro-cellules. Afin d'évaluer les différentes contributions le long du gradient de densité, la figure 4.18 présente les différentes macro-cellules calculées à partir de la courbe à 12 ps de la figure 4.17, ainsi que 3 spectres calculés à partir de 3 macro-cellules, les numéros 1, 5 et 10. On remarque que l'absorption du rayonnement X est différente en fonction de la densité. En particulier, la cellule 10 contribue beaucoup pour l'absorption de la raie 1s-2p Al^{5+} alors qu'elle est négligeable pour la raie 1s-3p Al^{3+} . Cette dernière n'est présente que

dans la partie dense du plasma.

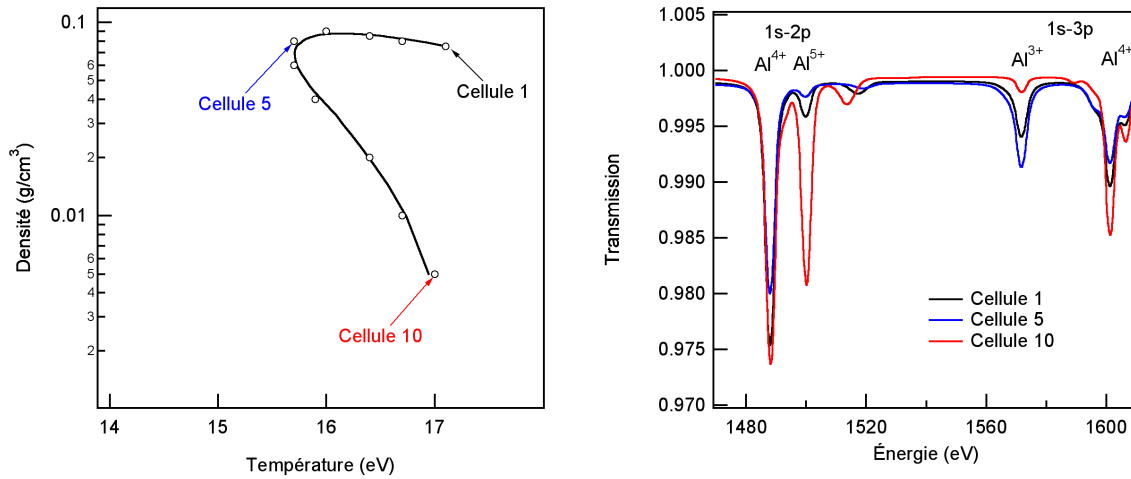


Figure 4.18 – Différentes transmissions calculées le long du plasma pour un temps donné, et pour 3 cellules (sur les 2 bords et au milieu).

4.4.2.3 Discussions pour les temps intermédiaires

La figure 4.19 présente les différentes coupes pour des intensités lasers variées et différents temps de sonde, aussi bien que les calculs théoriques. Chaque spectre d'absorption est défini par l'intensité laser de chauffage et le délai entre la pompe et la sonde. La densité surfacique utilisée pour calculer les spectres de transmission est égale $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Ceci est en bon accord avec la mesure de la densité surfacique ($12,1 \pm 2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ - voir section 4.2.4) qui correspond la limite inférieure de nos mesures. Les spectres sont convolués par la résolution spectrale de notre système, c'est-à-dire 2 eV.

Les spectres mesurés aux trois premiers temps, (a), (b), et (c), présentent des raies plus larges dans les raies d'absorption 1s-3p des ions Al^{3+} et Al^{4+} que dans le calcul. Cet élargissement est principalement dû à l'élargissement par impact électronique, qui est bien connu pour être très important dans les plasmas très denses et de température modérée (Audebert et al., 2005).

À 7 ps et 12 ps, un bon accord est obtenu entre les spectres expérimentaux et théoriques. Cependant, les ailes d'absorption des transitions 1s-2p de l'ion Al^{4+} sont sur-estimées par le calcul, ce qui peut être dû à une trop grande largeur d'auto-ionisation dans le calcul.

Les raies satellites provenant des ions excités Al^{3+} et le décalage négatif des seuils de photo-ionisation, dû à l'abaissement de potentiel, contribue à accroître l'absorption de l'aile rouge de la raie 1s-3p de l'ion Al^{4+} . Pour un plasma d'aluminium à l'ETL à une température de 16 eV et à une densité de $0,09 \text{ g}/\text{cm}^3$, proche des conditions obtenues à 12 ps, les décalages

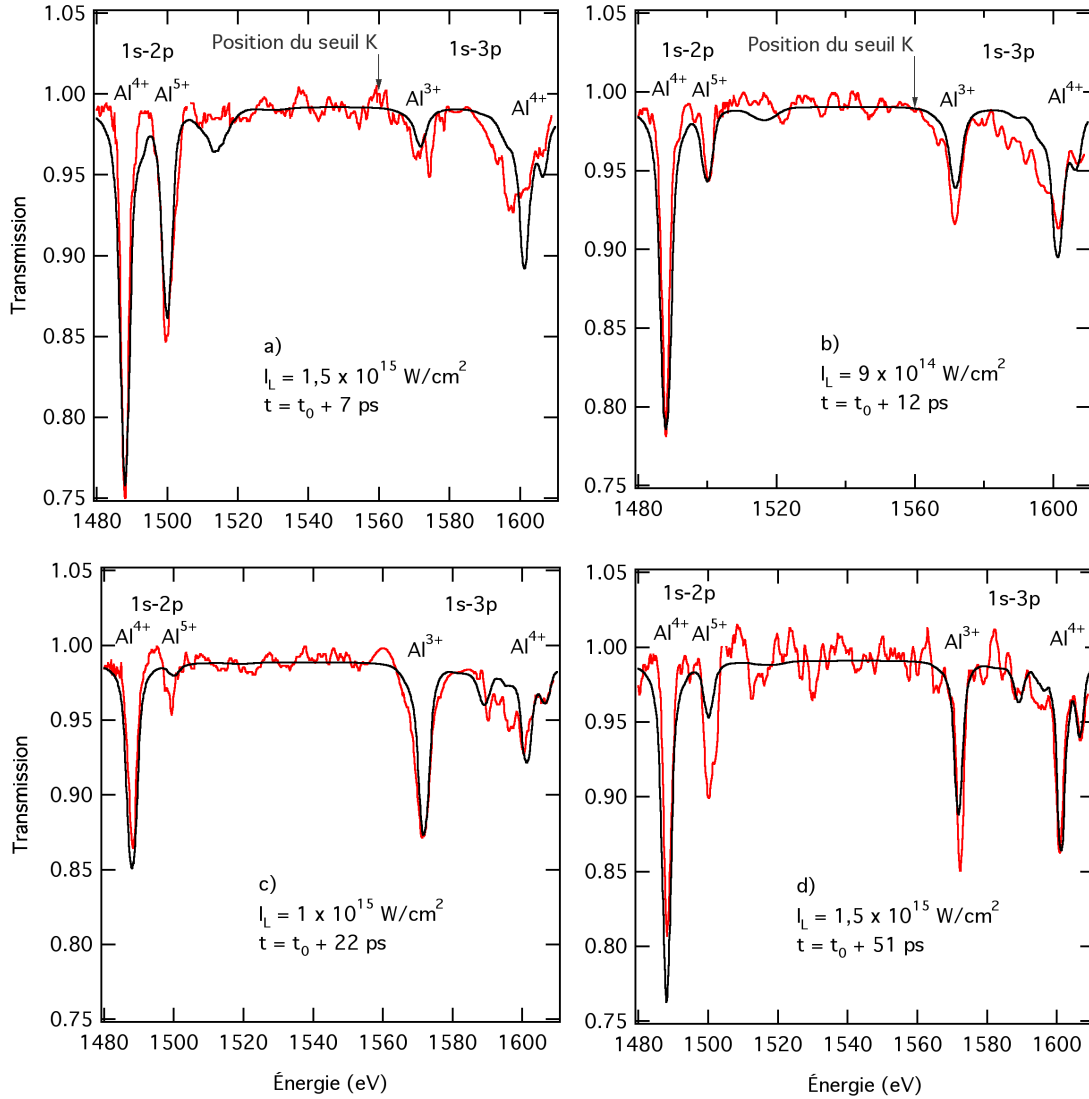


Figure 4.19 – Spectres de transmission mesurés à différents temps après le faisceau de chauffage (courbes noires), comparées aux spectres calculés (courbes rouges) avec les paramètres du plasma issu du diagnostic FDI (voir figure 4.17).

théoriques du seuil de photo-ionisation sont compris entre -21,9 eV et -8,8 eV pour des états d'ionisation compris en l'ion Al^{6+} et Al^+ . De tels effets sont aussi présents à 22 ps, mais négligeables à 51 ps.

Une asymétrie dans l'aile rouge (c'est-à-dire la partie basse énergie) due aux raies de résonance non résolues et aux raies satellites de l'aluminium peut être aussi observée pour la structure d'absorption 1s-3p de l'ion Al^{3+} à 12 ps. Les raies de résonance et satellite de l'ion Al^{2+} non résolues expérimentalement sont responsables de cette asymétrie. Les calculs indiquent que l'aile bleue de la structure d'absorption de l'ion Al^{3+} n'est pas affectée par les raies voisines. Nous pouvons tester le calcul d'élargissement par impact électronique basé

sur une méthode semi-empirique (Geindre et al., 2001), où la largeur à mi-hauteur de la raie 1s-3p de l'ion Al^{3+} est égale à 1,5 eV. En prenant en compte la résolution spectrale, nous obtenons 1,8 eV, ce qui est proche de la valeur expérimentale de 1,86 eV. Une meilleure résolution temporelle, en utilisant une source de rayonnement X de plus courte durée, nous permettrait de tester les calculs d'élargissement de raies dans un régime de plasma plus dense produit au début de l'interaction laser-cible. En effet, l'intégration temporelle mélange beaucoup de paramètres thermodynamiques différents, le plasma évoluant très rapidement en quelques picosecondes. Ainsi, il nous est impossible de mesurer un spectre très dense et chaud d'un plasma ayant peu de gradients. Une sonde plus courte permettrait de réduire ces gradients.

Au temps tardif de 51 ps (d), les structures mesurées sont en bon accord avec les structures d'absorption expérimentale. Comme le montre la figure 4.12, les effets non stationnaires qui tendent à ralentir la recombinaison du plasma pourraient être responsables de la sous-estimation de la raie d'absorption 1s-2p de l'ion Al^{5+} .

4.4.2.4 Discussions pour les temps extrêmes

La méthode expérimentale utilisée permet d'obtenir des spectres dans des conditions extrêmes, correspondant à des mesures très tôt ou très tard dans le temps. Dans le premier cas, le spectre d'absorption intègre pendant 4 ps des conditions thermodynamiques très différentes. En effet, le spectre mélange l'absorption de l'aluminium froid (avant l'impulsion de laser de chauffage), et l'absorption d'un plasma ayant de forts gradients de densité et de température dû à sa détente rapide.

Temps court : plasma chaud et dense

La figure 4.20 présente un spectre expérimental (courbe bleue) obtenue pendant le chauffage de la cible, comparé avec deux spectres théoriques (courbes en noires). Le diagnostic FDI nous donne une intensité laser de $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, et les paramètres thermodynamiques correspondant aux délais $t_0 + 1$ à 2 ps sont présentés figure 4.17.

La courbe en pointillés correspond à une simulation OPA-S effectuée avec une moyenne des couples de densité-température du diagnostic FDI. On remarque que les deux raies d'absorption 1s-2p des ions Al^{4+} et Al^{5+} sont correctement décrites, contrairement aux deux raies 1s-3p. Le seuil de transmission n'est pas bien décrit. Par contre, en ajoutant une contribution de l'aluminium froid dans le spectre d'absorption, on abaisse l'énergie du seuil d'absorption et on élargie la raie 1s-3p de l'ion Al^{3+} (proche du seuil). La courbe pleine (en

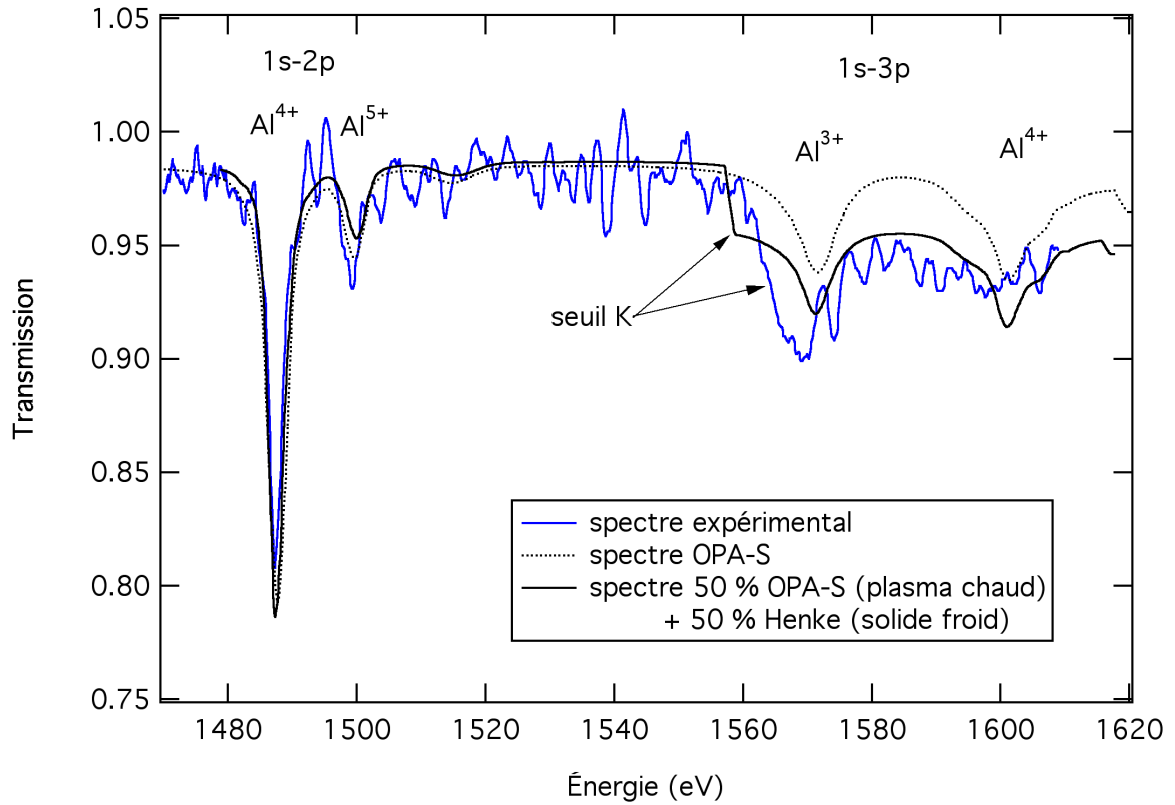


Figure 4.20 – Spectre expérimental (bleu), obtenu pour une intensité laser de $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et un délai de 0 ps entre la pompe et la sonde, et deux spectres théoriques (noirs). La courbe en pointillée présente une simulation OPA-S avec une densité et une température moyenne. La courbe pleine est un mélange de spectre froid (table de Henke) et d'une simulation OPA-S.

noire) est donc un mélange d'une simulation OPA-S et du spectre d'absorption d'un plasma froid (section 2.1.1).

Le résultat obtenu n'est toujours pas entièrement satisfaisant, la transmission 1s-3p de l'ion Al^{4+} est trop profonde dans la simulation alors que celle de l'ion Al^{3+} ne l'est pas assez. Du point de vue théorique, la physique atomique proche des seuils d'absorption est encore mal calculée : en particulier, l'effet dû à l'environnement de l'atome est mal pris en compte, c'est-à-dire lorsque la densité est telle que l'on ne peut pas considérer l'atome absorbant comme isolé. Du point de vue expérimental, la résolution temporelle limitée conduit à un mélange de conditions thermodynamiques différentes. Par exemple, la position en énergie du seuil K varie en fonction de la densité et de la température. Ceci explique pourquoi la raie 1s-3p de l'ion Al^{3+} est très élargie, car elle est confondue avec plusieurs positions du seuil K. En réduisant l'intégration temporelle (en ayant une sonde de rayonnement X plus courte) et la zone d'absorption (en utilisant une cible multicouche), il serait possible de quantifier ce décalage.

Temps long : plasma froid et dilué

La figure 4.21 présente un spectre expérimental (courbe bleue) obtenu pour un long délai entre la pompe et la sonde, 52 ps après l'impulsion de chauffage, et une intensité laser de $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les paramètres thermodynamiques correspondant aux délais $t_0 + 52 \text{ ps}$ sont également présentés figure 4.17.

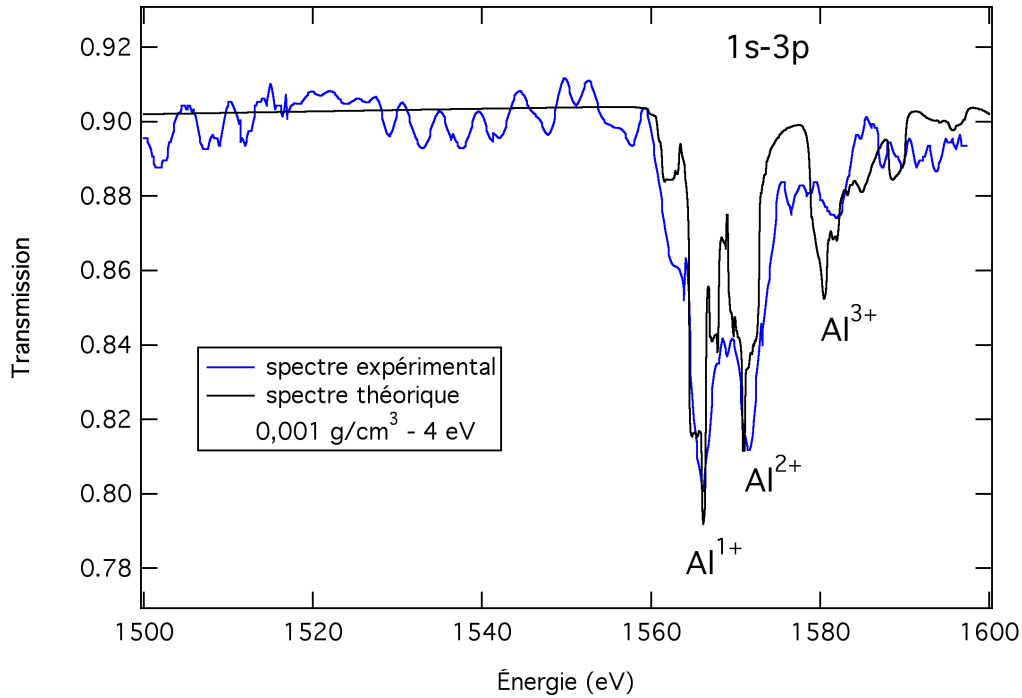


Figure 4.21 – Spectres d’absorption expérimental (bleu) et théorique (noir) d’un plasma d’aluminium froid et dilué ($I_{laser} = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $t = t_0 + 52 \text{ ps}$). Le spectre théorique a été calculé avec une densité 10 fois inférieure à celle prévue par le diagnostic FDI.

Dans ce cas-ci le plasma s’est détendu, il est relativement froid et dilué (moins dense que précédemment). Le diagnostic FDI prédit une densité moyenne d’environ $0,01 \text{ g/cm}^3$ et une température moyenne de 6 eV (voir figure 4.17). Dans ces conditions, le calcul OPA-S ne restitue pas correctement le spectre. En changeant les conditions thermodynamiques, on arrive à reproduire le spectre expérimental. La courbe noire présente le résultat obtenu avec une densité de $0,001 \text{ g/cm}^3$ et une température de 4 eV . Ce qui revient à diminuer la densité d’un facteur 10, ainsi que la température de 2 eV .

Ce facteur 10 pourrait correspondre à une détente tridimensionnelle, ce qui n’est pas décrit par un modèle théorique 1D (MULTI-FS). En effet, pour les temps longs le diagnostic FDI ne permet plus de mesurer la phase. La réflectivité de l’aluminium devient alors quasiment nulle : l’impulsion laser n’est plus réfléchie par la densité critique, et elle est fortement absorbée. On peut donc supposer que l’approximation du modèle à une dimension (section

4.3.1.1) n'est plus valide, le plasma se détend plus rapidement, la densité et la température doivent être plus faibles que celles calculées.

4.4.3 Récapitulatif des plasmas sondés

Dans l'introduction de ce chapitre, un diagramme densité-température (figure 4.1) présente les expériences déjà effectuées sur les mesures d'absorption de rayonnement X, un plasma d'aluminium chauffé par différentes méthodes. Cette représentation est reprise sur la figure 4.22, sur laquelle sont ajoutés les points de mesure correspondant aux spectres présentés précédemment.

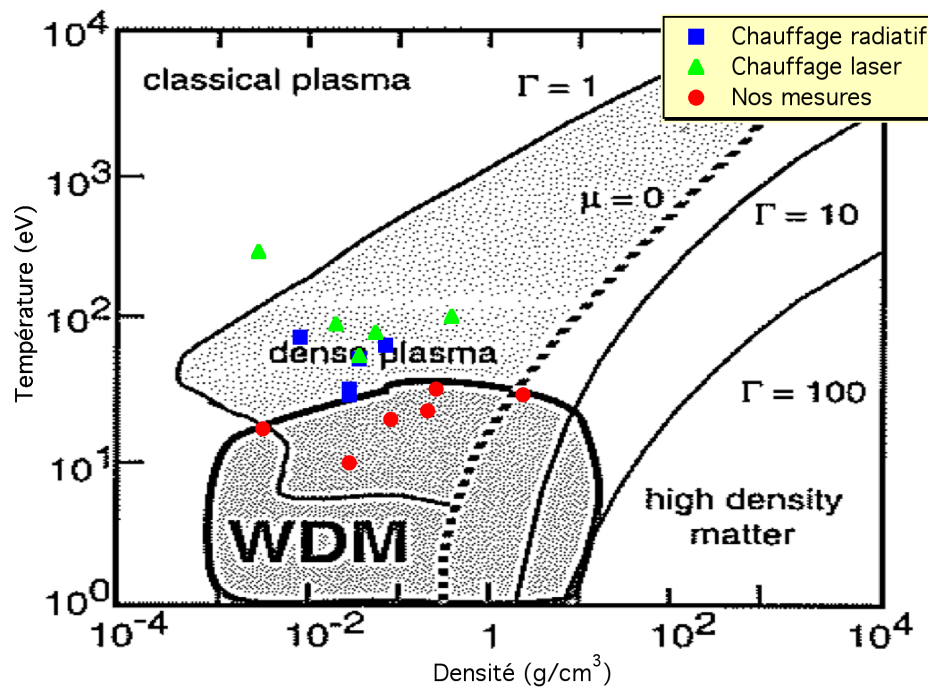


Figure 4.22 – Diagramme densité-température présentant la région définie comme la *warm dense matter* pour l'aluminium (figure provenant de Lee et al. 2003). Les points présentent des points de mesure d'absorption pour un plasma d'aluminium par chauffage radiatif (carrés bleus), par chauffage laser (triangles verts), et ceux réalisés lors de notre expérience (ronds rouges).

Les mesures effectuées par chauffage radiatif et par chauffage laser se situent à des températures relativement élevées. Alors que celles que nous avons effectuées se situent dans la région de la *warm dense matter*. Le plasma d'aluminium est relativement dense (10^{-2} - 1 g/cm³) et sa température est de quelques dizaines d'électrons-Volt.

4.5 Absorption d'un plasma de brome

Nous avons également mesuré un spectre d'absorption du brome, obtenu à partir d'un plasma de KBr. Le brome est un élément de numéro atomique élevé ($Z = 35$), l'émission ou l'absorption du rayonnement X pour ce type de plasma est le sujet de nombreuses études. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.1, le rayonnement peut être approximé par un faisceau de transition appelé UTA ou STA. De plus, beaucoup d'énergie est dissipée par le rayonnement, et l'évolution de l'hydrodynamique en est modifiée.

Nous avons mesuré l'absorption des transitions de couche L du brome, accessibles par notre spectromètre. La figure 4.23-a présente le spectre brut mesuré pour une cible multi-couche composée de 25 nm de Si_3N_4 , 50 nm de KBr, et 20 nm de carbone, avec un délai de 6 ps entre la pompe et la sonde. On y voit clairement deux structures qui correspondent à des transitions du type 2p-3d. Le trait noir correspond à la coupe présentée figure 4.25.

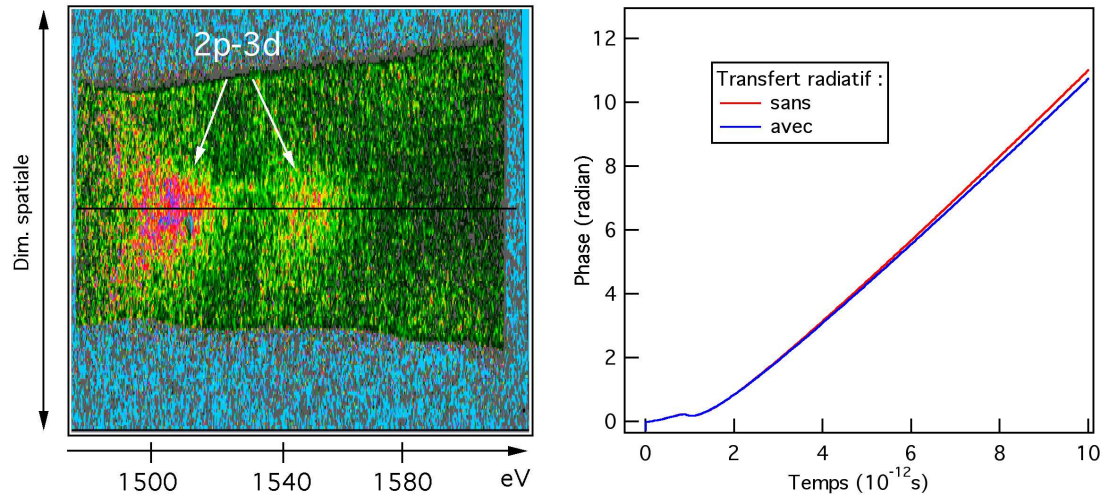


Figure 4.23 – a) Spectre brut d'un plasma de brome (25 nm Si_3N_4 + 50 nm KBr + 20 nm C). b) Phase mesurée par FDI (carrés) et calculée avec MULTI-FS par deux simulations hydrodynamiques différentes : avec (courbe rouge) et sans (courbe noire) le transfert radiatif.

La figure 4.23-b présente la comparaison de l'évolution de la phase du faisceau diagnostic réfléchi par le plasma (section 3.4) en réalisant les simulations MULTI-FS avec et sans la prise en compte du transfert du rayonnement dans l'hydrodynamique (c'est-à-dire avec ou sans le terme S_k dans l'équation 3.20). L'énergie laser estimée pour obtenir ces courbes est de $2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. L'évolution est très similaire jusqu'à 6 ps. Ensuite, les courbes divergent un peu, mais la différence reste inférieure à la précision de la mesure (voir phase expérimentale).

La figure 4.24 présente la gamme de densité et de température sondée par le rayonnement X, centré autour de 6 ps (± 2 ps), calculée avec MULTI-FS (en prenant en compte le transfert

du rayonnement). Les parties du plasma correspondant à l'épaisseur du nitrure de silicium et à celle du carbone sont respectivement en tiret et en pointillé. L'absorption du rayonnement se fait essentiellement dans le brome, aux conditions de densité et de température du KBr. En effet, le potassium (K), le carbone, et le Si_3N_4 sont quasiment transparents dans cette gamme d'énergie.

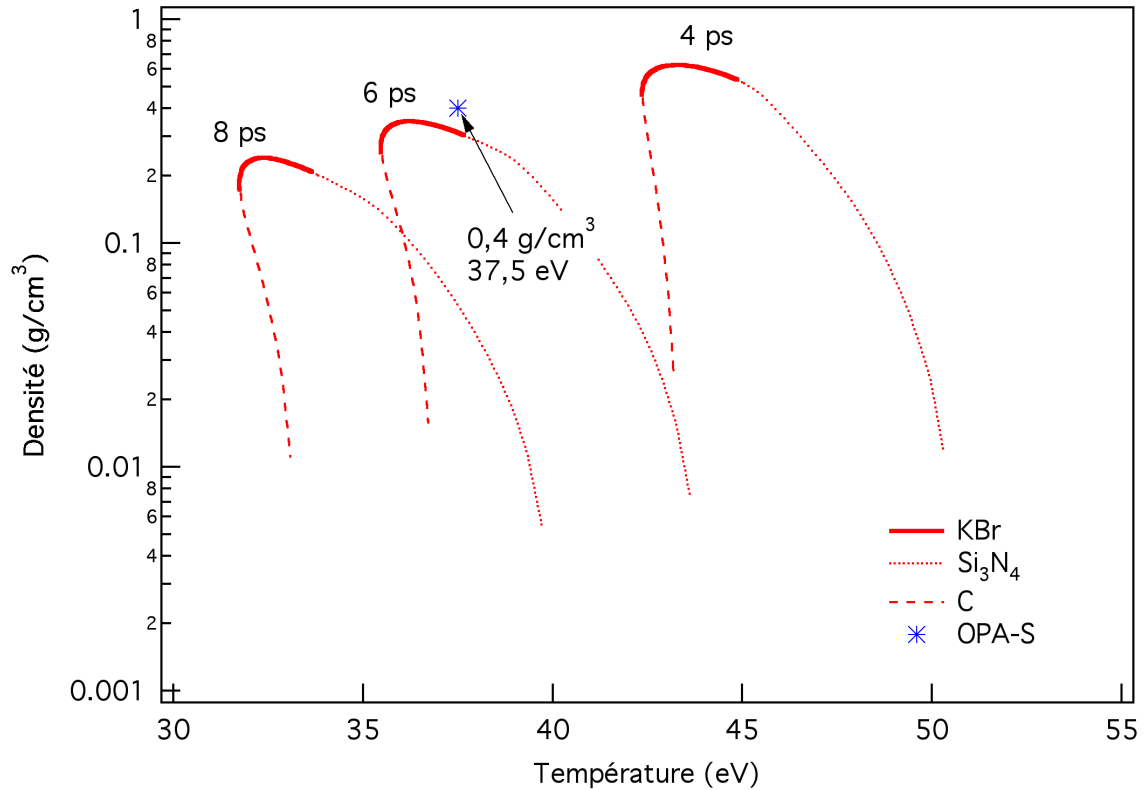


Figure 4.24 – Couples de densité-température le long de l'axe d'absorption de rayonnement X pour différents temps, centrés sur 6 ps (± 2 ps) du plasma de KBr. Les parties en tiret correspondent au carbone, celles en pointillées correspondent au nitrure de silicium. Le point bleu correspond à la valeur moyenne, et est utilisé pour réaliser les simulations de la figure 4.25.

Cette simulation montre que l'utilisation d'une cible tri-couches permet de sonder un plasma ayant un faible gradient de densité dans l'épaisseur de la feuille. Le fort gradient de densité qui affectait les mesures dans l'aluminium (voir figure 4.17) est maintenant située dans la couche de carbone.

La figure 4.25 présente une coupe au centre de la tache focale du spectre d'absorption de la figure 4.23, et deux spectres calculés par le modèle OPA-S. Les simulations sont réalisées avec une valeur moyenne des densités et des températures.

On observe deux structures d'absorption 2p-3d à 1500 et 1540 eV environ. L'interaction spin-orbite, agissant principalement sur l'orbitale 2p, est responsable du décalage entre ces

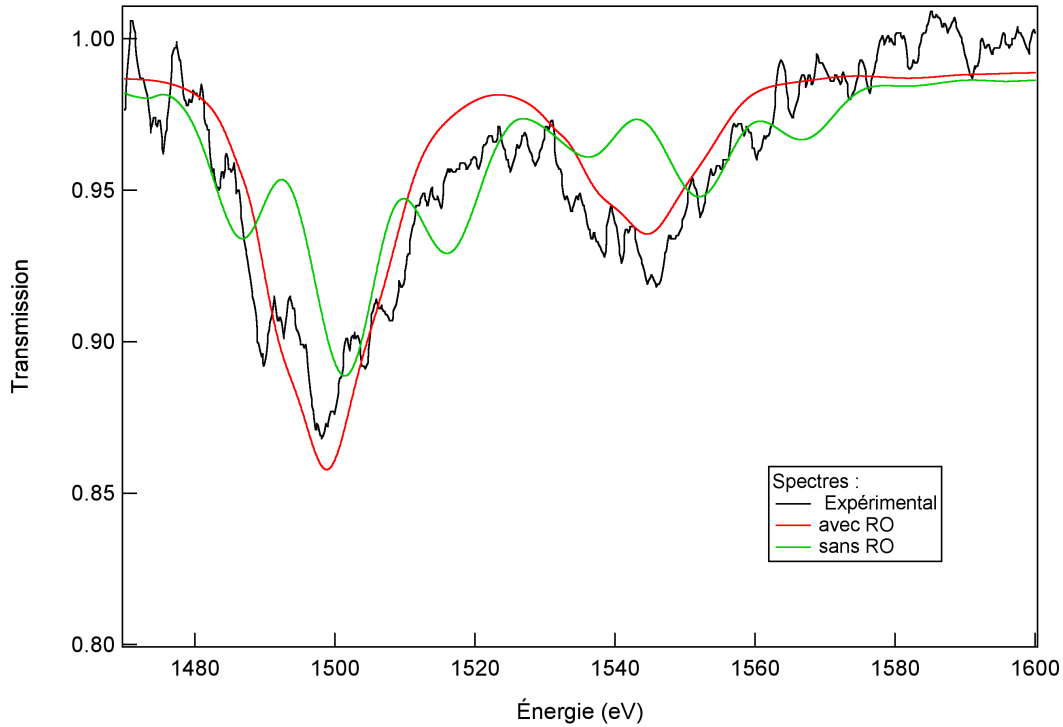


Figure 4.25 – Spectres d’absorption expérimental (noir) et théoriques. La courbe verte est une simulation OPA-S sans relaxation d’orbitale, la rouge avec relaxation d’orbitale.

deux structures. La densité et la température du plasma utilisées pour le calcul d’opacité sont celles qui sont déduites des valeurs moyennes du diagnostic FDI, soit 37,5 eV et 0,4 g/cm³. La courbe expérimentale est comparée à deux spectres théoriques calculés en tenant compte ou non de la relaxation des orbitales, et sont très différents.

Sans relaxation d’orbitale, le spectre présente de nombreuses structures qui n’apparaissent pas dans le spectre expérimental. Ces structures équidistantes sont associées aux contributions individuelles des ions les plus probables dans le plasma. Avec la prise en compte des relaxations d’orbitales, la distance moyenne entre ces structures diminue, de même que le décalage spin-orbite. La position des structures expérimentales est correctement décrite. Le rapport des deux structures principales est meilleur quand on tient compte de la relaxation des orbitales. On peut toutefois remarquer que le calcul sous-estime légèrement les largeurs à mi-hauteur des structures.

4.6 Conclusion

Nous avons mesuré les opacités spectrales de plasmas denses, en utilisant un chauffage par une impulsion laser très intense et très courte. Parallèlement, pour chaque spectre d’ab-

sorption de rayonnement X mesuré, nous avons déduit les paramètres thermodynamiques du plasma sondé de façon indépendante. Ce qui nous a permis d'interpréter les spectres d'absorption de rayonnement X en termes d'opacités spectrales.

Nous avons mesuré l'absorption de rayonnement X de plasmas d'aluminium, dans une large gamme de densité ($0,001 - 1 \text{ g/cm}^3$) et de température (12 - 25 eV). Nous avons également mesuré l'absorption du brome dans un plasma de bromure de potassium (KBr), ayant une densité moyenne de $0,4 \text{ g/cm}^3$ et une température moyenne de 37,5 eV. Elles nous ont permis de mettre en évidence les limitations de notre système expérimental, qui sont principalement :

1. la durée de sonde de rayonnement X trop longue. En effet, au premier instant suivant le chauffage de la cible le plasma évolue très rapidement. Le spectre d'absorption est donc un mélange de différentes conditions thermodynamiques. Il est ensuite difficile, voire impossible d'isoler les différentes contributions de l'absorption.
2. l'intégration longitudinale le long du plasma mélange une large gamme de densités (environ un ordre de grandeur). Celle-ci peut être réduite en utilisant une cible multicouches, comme nous l'avons montré pour l'absorption du brome.
3. le diagnostic de la densité et de la température n'est valide que pour les temps relativement tôt, où les effets bi-dimensionnels sont négligeables. En effet, dans le cas contraire, les spectres d'absorption de rayonnement X théoriques ne restituaient pas correctement les mesures expérimentales.

Pour conclure, nous avons mesuré et comparé quantitativement l'opacité spectrale de plasma dense et chaud dans des conditions de WDM encore mal connues du point de vue théorique. Les mesures dans l'aluminium ont montré que la description théorique des seuils d'absorption et le mélange avec les raies d'absorption $1s-np$ (pour $n \geq 3$) sont encore mal compris. Les mesures dans le brome ont montré l'importance de la prise en compte de la relaxation d'orbitales. Toutes ces mesures ont permis de tester le code OPA-S dans des conditions très sensibles aux effets de l'environnement.

Spectroscopie d'absorption de rayonnement X d'un matériau présentant une dynamique ultra-rapide : le VO₂

DANS ce chapitre je présente un système expérimental permettant l'étude de transitions de phases ultra-rapides, au moyen de spectroscopie d'absorption de rayonnement X. Ce système est basé sur une source de rayonnement X d'une durée de quelques picosecondes, produite par interaction laser-matière. Le dioxyde de vanadium (VO₂) qui présente une transition de phase semiconducteur-métal permet de tester la faisabilité de la méthode.

Une autre justification de ces études est d'élucider le rôle des effets électroniques ou de la structure cristalline du VO₂ dans le déclenchement de la transition de phase. L'élucidation de l'origine du mécanisme de transition peut contribuer à une meilleure compréhension des phénomènes ultra-rapides. De plus, les propriétés du matériau permettent d'envisager de fabriquer des dispositifs de commutation ultra-rapides, en utilisant ses caractéristiques électriques ou optiques.

Je présenterai les recherches déjà réalisées dans ce domaine, tout d'abord en ce qui concerne les sources de rayonnement X pour l'étude des phénomènes transitoires, puis les travaux sur le VO₂. Ensuite, je décrirai la méthode de caractérisation de notre spectromètre, fonctionnant dans la gamme XUV, entre 1 et 5 nm. J'expliquerai ensuite l'étude permettant d'optimiser la source de rayonnement X en terme de brillance. Enfin, je terminerai en présentant des mesures de l'absorbance du VO₂ dans sa phase basse température, et un résultat obtenu en dynamique par pompage optique. Durant ces travaux, les expériences ont été réalisées à l'INRS sur deux systèmes lasers différents. Le premier est cadencé à 10 Hz, le second à 100 Hz (voir paragraphe 3.1.3). Leurs régimes de fonctionnement étant très proches : durée d'impulsion inférieure à la centaine de femtosecondes, et intensité de l'ordre de quelques 10¹⁷ W/cm², l'interaction laser-matière est similaires. Chaque figure précisera le système laser utilisé pour obtenir le résultat présenté.

5.1 Introduction

Nous souhaitons mettre en place une expérience de spectroscopie d'absorption de rayonnement X ayant les caractéristiques pour réaliser une mesure de XAS (pour *X-ray Absorption Structure*) résolue en temps, en utilisant une source produite par laser. Nous allons étudier la faisabilité de la méthode, en utilisant des échantillons de dioxyde de vanadium (VO_2) produits à l'INRS. Le VO_2 , excité par une impulsion laser sub-picoseconde, présente une transition de phase ultra-rapide. Cette méthode permettrait d'étudier des systèmes plus complexes, présentant également une transition de phase ultra-rapide, sur de petites installations (par rapport aux grands instruments).

L'objectif est d'obtenir des informations sur le processus de la transition de phase dans du VO_2 , en mesurant des spectres d'absorption de rayonnement X. En effet, si l'on étudie le spectre proche des seuils d'absorption, on observe une structure, appelé XAS. On peut séparer cette dernière en deux sous-structures, donnant des informations différentes. La structure proche du seuil, appelée XANES pour *X-ray Absorption Near Edge Structure*, donne des informations sur chacune des bandes électroniques, et par extension sur les bandes de valence et de conduction dans un semiconducteur ou un isolant. La structure éloignée du seuil, appelée EXAFS pour *Extended X-ray Absorption Fine Structure*, permet d'obtenir les distances inter-atomiques. Ces deux structures caractéristiques ont déjà été abordées plus précisément dans le paragraphe 2.2.3. En étudiant ces structures en fonction du temps pendant la transition de phase, il est possible de déterminer les mécanismes moteurs de cette transition.

Notre système expérimental nous a permis de mesurer la structure de XANES du VO_2 . De plus, ce système fonctionnant dans la gamme d'énergie XUV entre 1 et 5 nm, il donne accès à la fenêtre de l'eau (2,3 - 4,4 nm) ce qui est crucial pour l'investigation d'échantillons biologiques. En effet, en travaillant dans cette gamme énergétique, l'absorption de l'eau est très faible par rapport à celle des matériaux biologiques comme l'azote (seuil K \sim 3 nm) et le carbone (seuil K \sim 4,4 nm), ce qui permet de travailler directement sur des échantillons dans un milieu aqueux. Cette technique permet par ailleurs de s'affranchir de toute préparation spécifique des échantillons, le contraste étant naturel.

Source X par laser pour la spectroscopie résolue en temps

Une des premières expériences démontrant le potentiel des sources X produites par laser pour l'absorption était basée sur la mesure résolue en temps d'une raie de résonance (Raksi et al., 1996). Dans cette étude, une cible solide de tantale était utilisée pour produire la source de rayonnement X. Des impulsions de rayonnement X (2,4 keV) étaient utilisées pour observer

la dissociation du SF₆ en phase gazeuse, avec une résolution temporelle picoseconde, en mesurant le changement d'intensité dans l'absorption de la raie de résonance, proche du seuil K du soufre.

Les sources de rayonnement X produites par laser ont été utilisées, avec une résolution temporelle proche de la dizaine de picosecondes et un taux de répétition de 10 Hz, pour des mesures du décalage du seuil L de l'aluminium (73 eV) avec une cible en or (Workman et al., 1997), pour l'observation des modulations proches du seuil L du silicium photo-excité (100 eV) avec une cible de tantale (Nakano et al., 1999), et pour l'étude du XANES résolu en temps d'une solution d'ions Fe(CN)₆⁴⁻ dans de l'eau proche du seuil K du fer (7 keV) (Lee et al., 2005).

Une étude détaillée d'un système expérimental de XANES dans la fenêtre de l'eau a également été présentée, pour réaliser des spectres résolus en temps en utilisant une source de rayonnement X produite à partir de différentes cibles : le cuivre, l'or ou des plastiques, et des durées d'impulsion nanoseconde cadencées à 10 Hz (Vogt et al., 2004).

Les autres sources X

Il existe d'autres types d'installations permettant de produire du rayonnement X, comme les synchrotrons et les lasers à électrons libres. Ce sont des grands instruments, et leurs accès en sont limités, dû aux nombres relativement faibles d'expériences disponibles par machine. De plus, il est relativement complexe de synchroniser le flux de rayonnement X produit avec un évènement qui déclenche la dynamique à étudier, comme une impulsion laser.

Le rayonnement produit par un synchrotron de troisième génération est la plus brillante des sources disponibles de nos jours. Par exemple, la brillance du rayonnement X, à 500 eV, sur les aimants de courbure du *Advanced Light Source* (ALS) à Berkeley, est de 3×10^{15} photons/s.mrad².mm²/0.1% de largeur de bande (ligne 5.3.1). La durée d'impulsion du rayonnement synchrotron est déterminée par la longueur du paquet d'électrons qui est de 60 ps sur ALS¹.

La technique du « slicing » permet de générer une impulsion ultra-courte de rayonnement X d'une durée inférieure à la picoseconde, à partir d'un synchrotron et d'un système laser ultra-rapide (Schoenlein et al., 2000). Cette technique réduit fortement la brillance de la source, à moins de 3×10^9 photons/s.mrad².mm²/0.1% sur l'onduleur ALS (ligne 6.3.1).

Les lasers à électrons libres sont un autre type de grands instruments, encore plus rares que les synchrotrons, ne permettant que très peu d'expériences. Par contre, c'est la source ultime

¹<http://www.als.lbl.gov/als/>

en terme de brillance. Par exemple, le Deutches Electronen-Synchrotron (DESY) XUV Free electron Laser à Hamburg (FLASH), associé avec une impulsion ultra-courte d'une durée de 100 fs², permet de produire jusqu'à 1×10^{24} photons/s.mrad².mm²/0.1% à 500 eV. Par contre, d'autres problèmes commencent à apparaître à de tels flux, comme l'endommagement des échantillons sondés.

Les défis expérimentaux

Pour observer l'évolution des structures autour des seuils d'absorption XUV du VO₂, le système expérimental doit avoir les caractéristiques adaptées en termes de résolution spectrale, de rapport signal sur bruit, et de résolution temporelle. De plus, pour mesurer quantitativement les coefficients d'absorption du VO₂ à partir d'un spectre, il est indispensable de mesurer également le spectre référence. Ces deux spectres doivent être mesurés dans les mêmes conditions expérimentales.

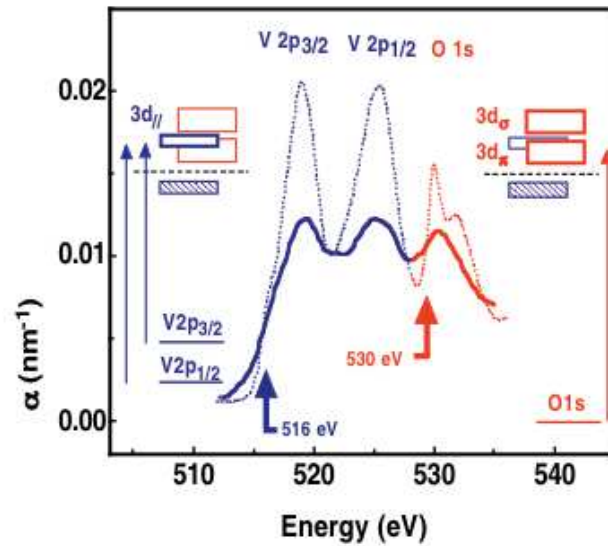


Figure 5.1 – Coefficient d'absorption du VO₂ obtenu par Cavalleri et al. (2005) pour deux résolutions spectrales différentes : 100 meV (courbe pointillée) et 4 eV (courbe pleine).

La figure 5.1 présente deux spectres d'absorption du VO₂ dans le domaine spectral autour de 500 eV, obtenus par Cavalleri et al. (2005), avec une résolution spectrale de 100 meV (courbe en pointillés) ou de 4 eV (courbe pleine). Sur les deux courbes, on distingue les deux contributions, dues au vanadium (en bleu) et à l'oxygène (en rouge), mais avec une résolution de 100 meV, on résout les contributions dues aux bandes 3d_π et 3d_σ de l'oxygène. Notre système expérimental permet d'obtenir une résolution de 2 eV ($\Delta E/E \simeq 2 \times 10^{-3}$). Cette résolution n'est pas optimale car elle ne permet pas de résoudre les deux bandes électroniques, mais il reste possible d'observer un changement dans la structure de XANES.

²TESLA XFEL, <http://www.tesla.desy.de>.

De plus, notre système expérimental doit aussi avoir un bon rapport signal sur bruit pour observer le changement d'absorption du VO_2 entre les phases conductrice et semi-conductrice. Comme le présente la figure 5.2 obtenue par Cavalleri et al. (2004), le rapport signal sur bruit doit être de l'ordre de 0,5 %. En effet, au niveau du seuil L du vanadium (vers 516 eV), ils ont mesuré une variation de l'absorption au cours du temps de 1 à 8 %, avec une résolution de 100 meV.

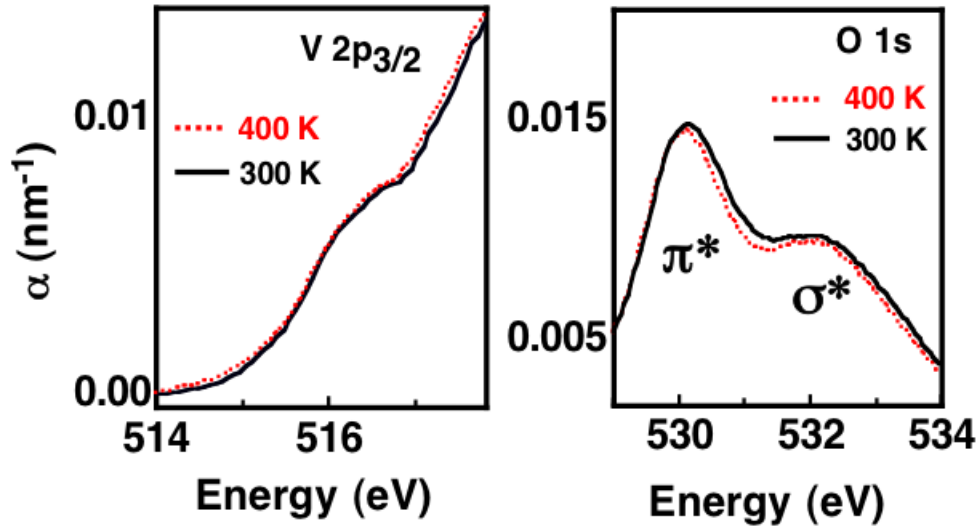


Figure 5.2 – Absorption du VO_2 obtenue par Cavalleri et al. (2004) présentant les phases à basse (trait continu) et à haute températures (pointillés), pour deux gammes d'énergie. À gauche, autour du pic $\text{V}2p_{3/2}$, et à droite autour des pics $\text{O}1s$.

Pour obtenir le meilleur rapport signal sur bruit, notre spectromètre est isolé de tous signaux parasites. Le rayonnement visible est supprimé en confinant le spectromètre dans une enceinte d'aluminium, et son entrée est filtrée par des films d'aluminium (~ 300 nm d'épaisseur). Le rayonnement X dur³ direct (émis par le plasma) est bloqué par des plaques de plomb. De plus, les électrons éjectés par le plasma sont déviés avant le spectromètre par deux aimants. En effet, les plus énergétiques d'entre eux peuvent générer du rayonnement secondaire en interagissant avec le réseau. Enfin, l'utilisation d'un laser cadencé permet d'accumuler sur un grand nombre de tirs jusqu'à obtenir le rapport signal sur bruit désiré.

Pour résoudre temporellement l'évolution de la structure, la résolution ultime serait d'une centaine de femtosecondes. Cette résolution n'est pas encore accessible en utilisant les sources de rayonnement X produites par interaction laser-matière. En utilisant une caméra à balayage de fente, il a été montré qu'il est possible d'atteindre 1,2 ps de résolution temporelle (Belzile et al., 2002; Gallant et al., 2000).

³Les photons, dans la gamme des X, ayant une énergie supérieure au keV sont généralement appelé « X durs » (par opposition on appelle « X mous » ceux inférieurs au keV).

De plus, il est nécessaire d'avoir des échantillons de VO_2 bien caractérisés, en particulier en terme d'épaisseur, et de qualité cristalline.

5.2 Le dioxyde de vanadium

Cette section récapitule les expériences déjà réalisées sur le dioxyde de vanadium. Chacune de ces expériences a permis d'approfondir les connaissances sur les phases basse et haute températures du VO_2 . En particulier, une brève description des résultats obtenus sur l'étude de la transition de phase photo-induite est décrite. Dans le cadre de ce travail, le VO_2 est utilisé comme un système modèle présentant une transition ultra-rapide et permettant de tester la faisabilité de la méthode d'absorption de rayonnement X par laser.

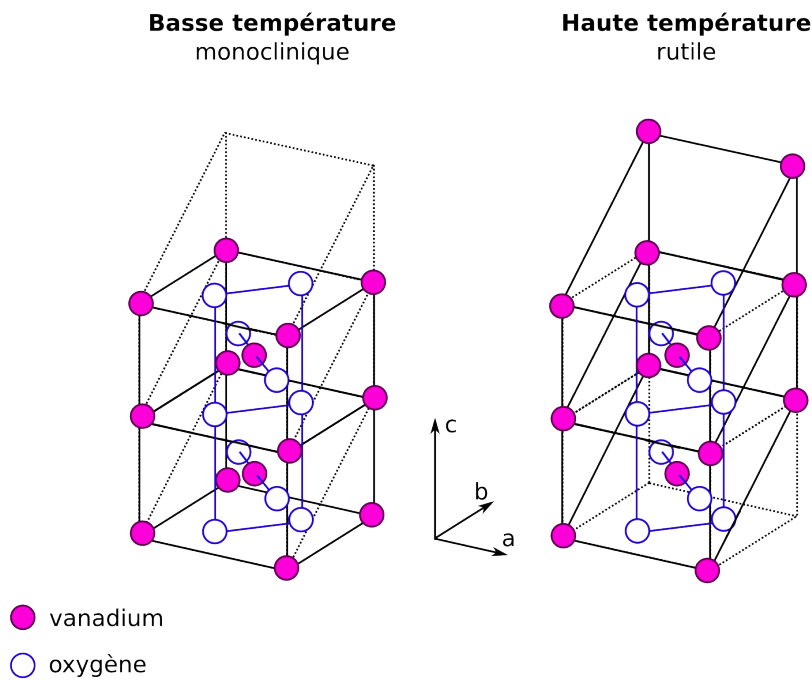


Figure 5.3 – Mailles cristallines du VO_2 dans ses phases basse température (monoclinique) et haute température (rutile).

5.2.1 La transition de phase

Le VO_2 est un composant fortement corrélé qui effectue une transition de phase solide-solide lorsqu'il est chauffé autour de 67°C . Il passe d'une structure rutile semi-conducteur à une structure monoclinique métallique (conductrice) (Morin, 1959; Imada et al., 1998). La figure 5.3 présente les deux structures cristallines du VO_2 . Cette déformation structurale s'accompagne d'une réorganisation des bandes électroniques.

Sur la figure 5.4 sont représentés les niveaux atomiques 2p du vanadium, et 1s de l'oxygène, et les niveaux moléculaires correspondant aux différentes bandes d'énergies. Dans la phase basse température, les bandes de conduction et de valence sont séparées par le niveau de Fermi (E_f). Dans la phase haute température, le niveau $3d_{||}$ (orbitale « d » du vanadium dans la direction de l'axe « c » de la maille rutile) n'est plus séparé par le niveau de Fermi.

Des études théoriques ont ravivé un débat long de 4 décennies (Wentzcovitch et al., 1994; Biermann et al., 2005). La question à élucider est : la transition est-elle entraînée par la déformation structurale (Goodenough, 1971), qui cause une séparation de la bande de conduction ou par une séparation de la bande de conduction (Paquet & Leroux-Hugon, 1980), qui cause une déformation structurale ?

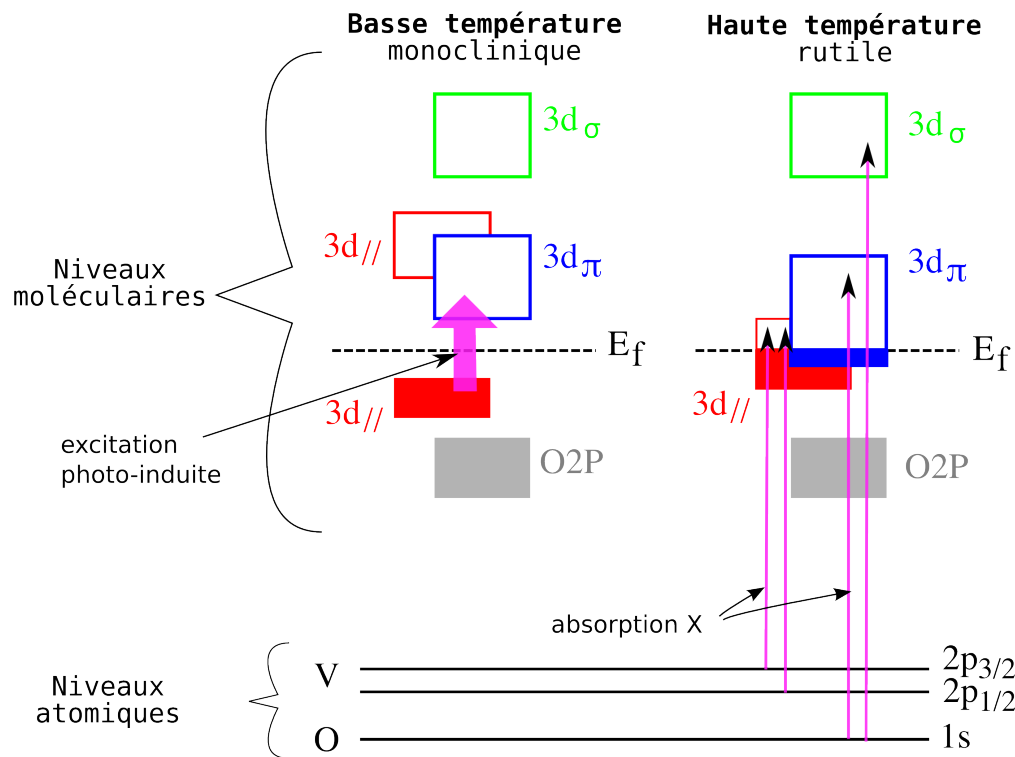


Figure 5.4 – Représentation des niveaux moléculaires et atomiques dans le VO_2 pour les deux phases, basse et haute températures.

Plus précisément, la première hypothèse suppose que la déformation structurale produit une séparation de la bande de conduction (transition de Peirls). La seconde hypothèse suppose que les deux électrons situés dans la bande de valence $3d_{||}$ stabilisent la structure ; lorsque ceux-ci sont excités, le réseau est déstabilisé (transition Mott-Hubbard). La plupart des auteurs d'articles récents s'accordent pour dire que la transition semi-conducteur à métal du VO_2 est une superposition des deux phénomènes et la classification unique de la transition est impossible.

5.2.2 Étude optique ultra-rapide de la transition de phase photo-induite

La réponse du VO₂ à une excitation optique dans l'infra-rouge (800 nm), a été étudiée pour la première fois en 1994 (Becker et al.), puis en 2004 (Cavalleri et al.). La photo-excitation de la phase basse température permet une transition optique entre la bande 3d_{||} et la bande 3d_π (voir figure 5.4). Cela a permis de montrer que le changement de la réflectivité et de la transmission du VO₂ par pompage optique est ultra-rapide, de l'ordre de la centaine de femtosecondes.

La technique de sondage par du rayonnement infra-rouge est sensible aux états de la bande de conduction, mais ne permet de sonder que la réponse collective de cette dernière, contrairement à la mesure du XANES qui permet de différencier les différents niveaux.

5.2.3 Diffraction X femtoseconde

La première expérience qui a permis de sonder l'évolution de la structure atomique, avec une résolution temporelle de quelques centaines de femtosecondes, a été réalisée par une mesure de la diffraction du rayonnement X (Cavalleri et al., 2001). Le signal mesuré durant les premières picosecondes démontre que la première étape dans la transition survient sur une profondeur de 40 à 60 nm.

De plus, une réponse acoustique cohérente, initiée par la transformation ultra-rapide, a été mise en évidence aux temps longs, de l'ordre de la centaine de picosecondes.

5.2.4 Absorption X de la transition de phase photo-induite

De récentes expériences ont été réalisées en utilisant des sources de rayonnement X produites sur le synchrotron ALS, avec des échelles de temps picoseconde et femtoseconde (Cavalleri et al., 2005). La transition de phase du VO₂ implique un mouvement des bandes électroniques du cristal. Les bandes électroniques constituent les différents états énergétiques, liés ou libres, que les électrons peuvent occuper dans le matériau. Les flèches sur la figure 5.4 représentent les transitions mesurées par absorption de rayonnement X.

La figure 5.5 présente les spectres d'absorption (XANES) obtenues par Abbate et al. (1991) dans les deux phases avec une résolution proche de l'ordre de 100 meV, pour les transitions à partir du seuil L du vanadium (a) et du seuil K de l'oxygène (b). Ces spectres ont été obtenus par fluorescence, en utilisant une source de rayonnement X polarisée produite par un synchrotron, sur des échantillons de VO₂ monocristallins chauffés de manière statique.

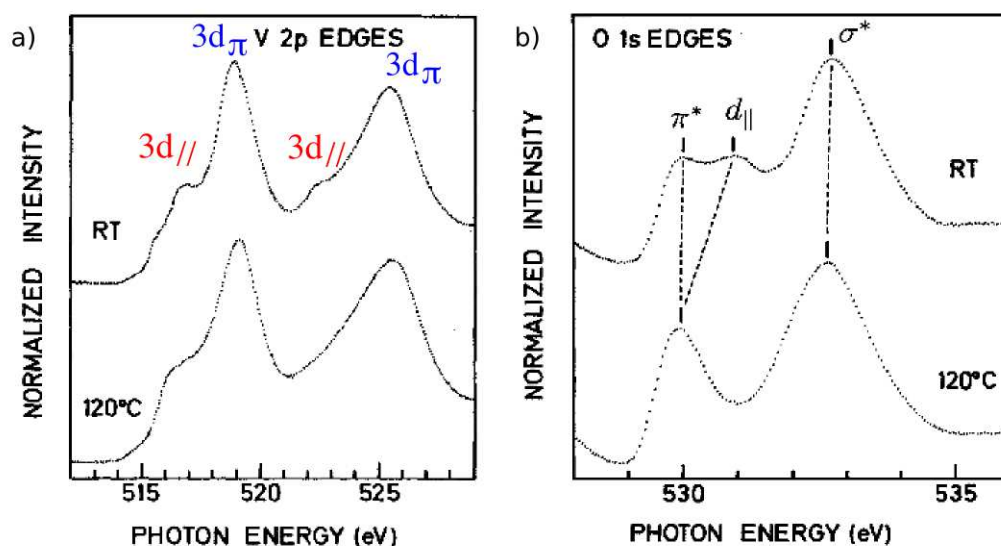


Figure 5.5 – Résultats obtenus par Abbate et al. (1991) sur l'absorption de rayonnement X dans du VO_2 , dans les phases basse et haute température. (a) présente les transitions à partir des niveaux $2p_{3/2}$ et $2p_{1/2}$ du vanadium, (b) présente celles obtenues à partir du niveau $1s$ de l'oxygène.

La résolution permet de résoudre les contributions des différentes bandes d'énergie ($3d_{\pi}$ et $3d_{||}$) pour les transitions du vanadium et de l'oxygène. Les principaux changements entre les phases haute et basse températures sont dus à la bande d'énergie $3d_{||}$. L'absorption de rayonnement X y est plus faible dans la phase haute température.

5.3 Description de l'expérience

Les systèmes lasers, le spectromètre à réseau, et les détecteurs ont déjà été décrits au chapitre 3. Cette section présente avec plus de précision la configuration expérimentale permettant de réaliser les expériences d'absorption dans du dioxyde de vanadium (VO_2), puis la méthode de fabrication de ce dernier, et différentes configurations des échantillons.

5.3.1 Principaux éléments et géométrie

Le schéma du dispositif expérimental est présenté à la figure 5.6. Il montre les principaux éléments de notre montage : le faisceau laser, la cible permettant de produire la source de rayonnement X, le spectromètre à réseau en réflexion, et les deux types de détecteurs, la caméra CCD ou la caméra à balayage de fente.

Durant ce travail, les expériences ont été réalisées sur deux installations laser similaires (voir section 3.1.3). La géométrie expérimentale est très proche, la différence étant l'angle

de focalisation du laser sur la cible. Le faisceau à 400 nm (vert sur la figure) est focalisé, à l'aide d'un miroir parabolique hors axe f/3, sur une cible solide avec un angle de 68 degrés par rapport à la normale de la cible avec le laser 10 Hz et de 45 degrés avec le laser 100 Hz . Le diamètre de la tache focale est de 10 micromètres, ce qui permet d'obtenir une intensité sur cible de l'ordre de quelques 10^{17} W/cm².

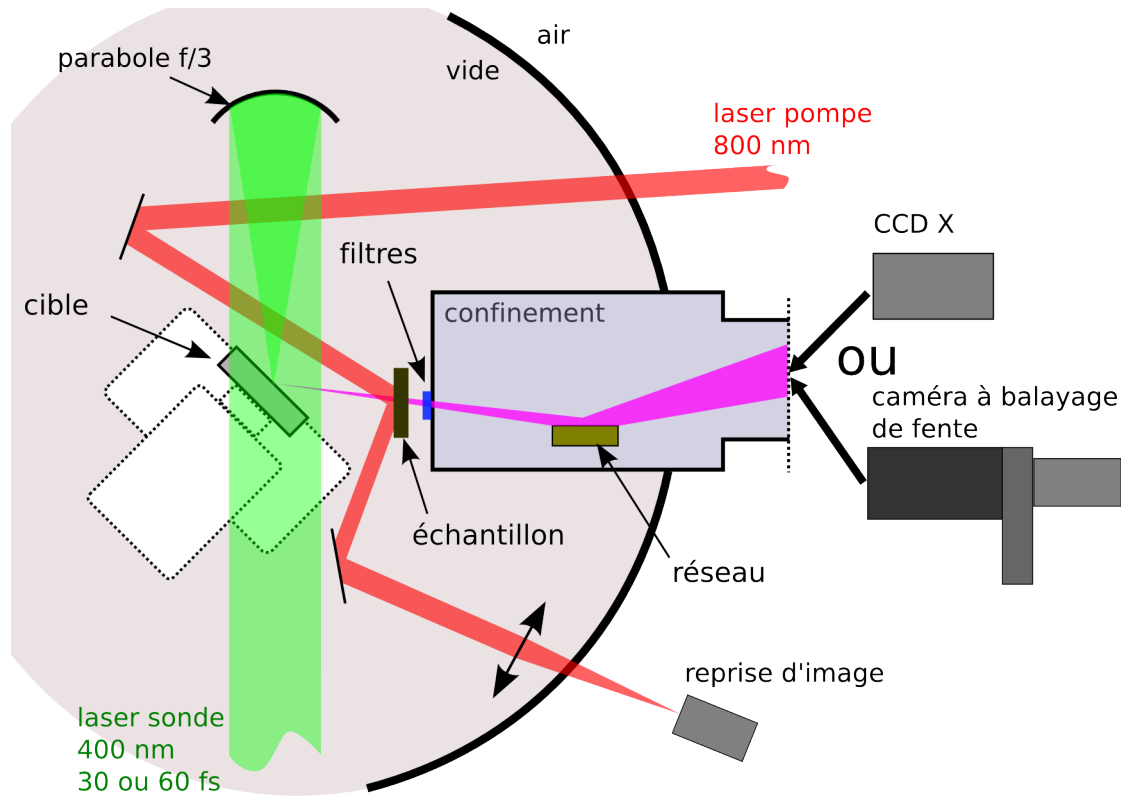


Figure 5.6 – Schéma expérimental présentant les principaux éléments : lasers, cible, filtres, réseau, et détecteurs (caméra CCD ou caméra à balayage de fente). Le faisceau à 400 nm, indiqué en vert, passe au dessus du support de cible puis est focalisé au centre de la chambre par le miroir parabolique.

La cible, positionnée sur des platines motorisées sur 3 axes et une rotation, est déplacée de façon continue de manière à toujours disposer d'une surface vierge lors de l'interaction laser-matière. Il est crucial d'éliminer les débris produits par la cible lors de l'interaction laser plasma car ils peuvent endommager les optiques du système ou bien se déposer sur celles-ci. Dans cet objectif, des films plastiques mobiles sont utilisés devant les optiques pour éliminer ces dommages qui dégradent l'émission de rayonnement X. Le rayonnement X produit est enregistré au moyen d'un photomultiplicateur PMT⁴ placé en dehors de l'enceinte sous vide et derrière une fenêtre de béryllium épaisse de 50 micromètres. Le signal PMT, enregistré par un oscilloscope, permet d'observer une fluctuation du rayonnement X tir à tir de 5 %. De plus, ce signal permet aussi de repérer la position optimale de la cible. En effet, le signal est

⁴Pour *PhotoMultiplier Tube*. Il permet de convertir le rayonnement incident en un signal électrique, puis de l'amplifier par un facteur de l'ordre de 10^8 .

le plus intense lorsque que l'intensité laser est maximale, correspondant à la taille minimale de la tache focale du laser, i.e. de la source de rayonnement X.

Le système de détection est placé à 45 degrés de la normale à la surface de la source de rayonnement X. Le spectromètre est entièrement blindé par des plaques d'aluminium ou de plomb, pour éviter tout bruit provenant du rayonnement direct produit par le plasma (visible ou X). Différents filtres sont utilisés, premièrement pour empêcher la lumière visible de pénétrer dans le spectromètre, par deux filtres d'aluminium d'environ 100 nm d'épaisseur déposé sur une grille de nickel ; deuxièmement pour protéger l'échantillon des débris provenant de la cible. Ces filtres sont régulièrement renouvelés. Des aimants sont aussi utilisés devant l'entrée du spectromètre pour dévier les électrons provenant du plasma. Le spectromètre est totalement motorisé, ce qui autorise un réglage fin du positionnement du réseau lorsque l'enceinte expérimentale est sous vide.

	Taille du détecteur (mm)	Gamme spectrale	
Caméra CCD	26	1,2 - 5,8	nm
		210 - 1000	eV
Caméra à balayage de fente	15	2,1 - 4,8	nm
		260 - 590	eV

Tableau 5.1 – Gamme spectrale accessible en fonction du détecteur utilisé.

La caméra CCD, utilisée pour des mesures intégrées en temps, est le modèle PI-MTE 1300B à haute sensibilité de Princeton Instruments (paragraphe 3.3.1). Elle permet d'enregistrer en une seule mesure la gamme spectrale complète, comprise entre 1 et 5 nm. Cette caméra peut facilement être remplacée, après l'alignement du réseau, par la caméra à balayage de fente PX1 (paragraphe 3.3.2). Une photocathode de bromure de potassium (KBr) a été choisie pour optimiser l'efficacité quantique autour de 500 eV. Le signal obtenu sur le phosphore à la sortie de la caméra à balayage de fente est amplifié grâce à un MCP Photeck par un facteur 2000. Le signal est ensuite enregistré par une caméra CCD Photometrics série 200. La caméra à balayage de fente est utilisée en mode accumulation, synchronisée avec l'impulsion laser à l'aide d'un système de commutateur optique (Belzile et al., 2002). La gamme spectrale accessible est différente selon le détecteur utilisé, car elle dépend de la taille de ce dernier (réduite pour la caméra à balayage de fente). Elles sont présentées dans le tableau 5.1.

5.3.2 Les échantillons de VO_2

Les échantillons de VO_2 utilisés durant ce travail ont été produits à l'INRS. Le VO_2 est déposé au moyen de pulvérisation magnétron radio-fréquence d'une cible de vanadium pure (99,99 %) dans un mélange de gaz [$\text{Ar}(90\%)$, $\text{O}_2(10\%)$] à une pression de 2 mTorr. Le VO_2 est déposé sur un substrat de silicium (plan atomique 100) précédemment recouvert d'une couche de 100 ou 200 nm de nitrure de silicium (Si_3N_4) (Brassard et al., 2005).

Les substrats $\text{Si}/\text{Si}_3\text{N}_4$ ont été produit à l'Université de Sherbrooke par LPCVD (pour l'acronyme anglais *Low Pressure Chemical Vapor Deposition*). Ce procédé permet de minimiser les tensions résiduelles permettant d'ouvrir des membranes de Si_3N_4 . Les membranes sont produites en enlevant le substrat de silicium par attaque chimique suivant les plans atomiques.

La figure 5.7 présente une image d'un échantillon de VO_2 obtenue à l'aide de la reprise d'image (voir figure 5.6). Elle présente une membrane carrée d'environ 2 mm^2 , ouverte dans le substrat de silicium, et est composée de 200 nm de Si_3N_4 et de 130 nm de VO_2 . Les taches sombres présentes sur la membranes sont dues aux débris d'ablation, éjectés par la cible pendant l'interaction laser-matière.

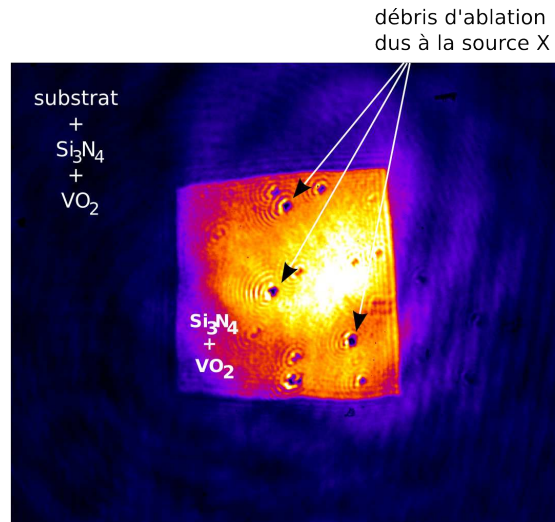


Figure 5.7 – Membrane carré d'environ 2 mm^2 composée de 200 nm de Si_3N_4 et de 130 nm de VO_2 , ouverte dans le substrat de silicium.

Le spectromètre, couplé à la caméra CCD, permet d'obtenir une résolution spatiale de l'absorption. Cela permet, en fonction de la configuration de l'échantillon, de mesurer en même temps le rayonnement X pour 2 zones. On peut choisir deux configurations possibles :

- (i) Si l'on souhaite mesurer le signal de référence (I_0), et le signal absorbé par le VO_2 (I), on réalise un échantillon composé d'une membrane de VO_2 et d'un trou. La figure 5.8 représente schématiquement cette configuration. Le rayonnement X émis par la source prend deux chemins. Le premier passe par le trou, le second est absorbé par le VO_2 . Ils sont ensuite dispersés par le réseau et mesurés simultanément par le détecteur, sur lequel on observe les deux spectres : I et I_0 .

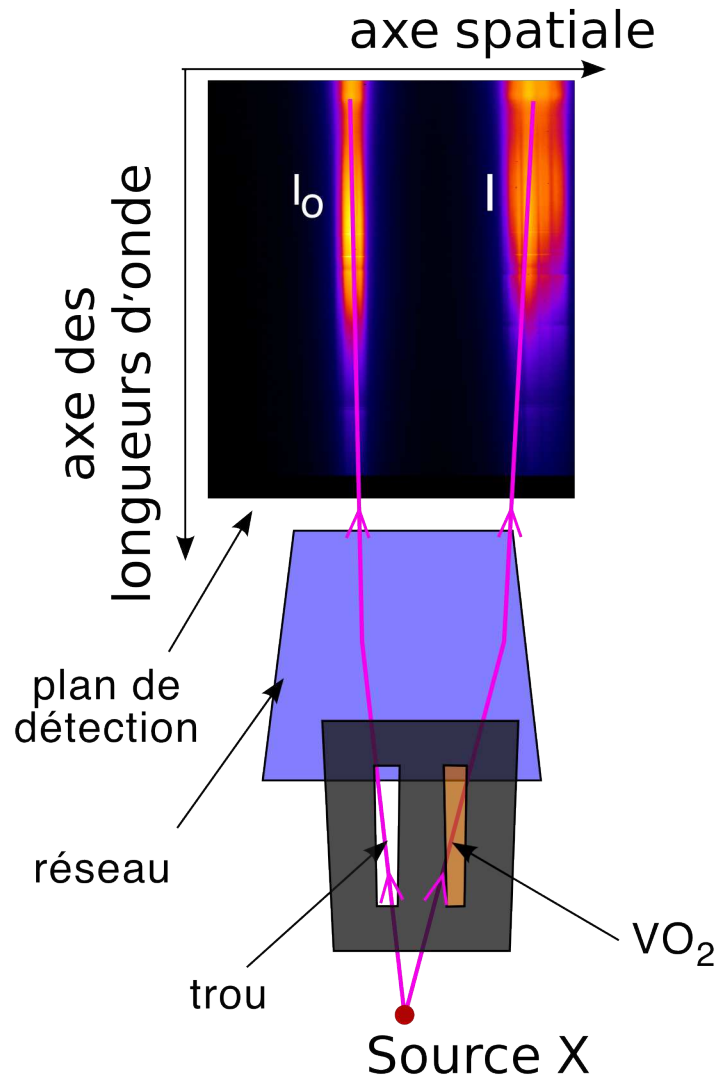


Figure 5.8 – Schéma représentant la source X, l'échantillon, le réseau, et le plan de détection. Le spectromètre ayant une résolution spatiale, permet de mesurer le spectre de référence (I_0) et le spectre absorbé par le VO_2 (I).

- (ii) Il est également possible de mesurer simultanément l'absorption de rayonnement X du VO_2 froid et excité. Pour cela, il suffit d'ouvrir une seule membrane, et de ne chauffer qu'une faible zone de la membrane avec le faisceau pompe. La figure 5.9 présente l'échantillon pour cette configuration. Trois membranes sont ouvertes, dont deux sont

percées (trous) et ne servent pas. Une partie de la membrane composée de $\text{VO}_2/\text{Si}_3\text{N}_4$ est excitée par le laser de chauffage (faisceau pompe).

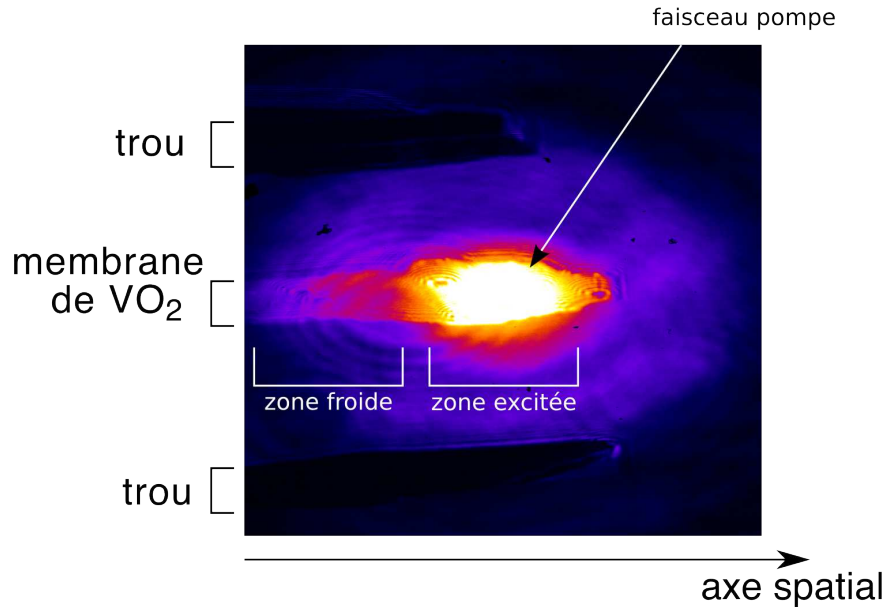


Figure 5.9 – Configuration de l'échantillon permettant de mesurer simultanément l'absorption du VO_2 froid et excité.

5.4 Caractérisation du spectromètre

Cette section décrit la méthode permettant de déterminer les paramètres caractéristiques du spectromètre. En particulier, des transitions atomiques connues du carbone sont utilisées afin (1) de calibrer le spectromètre, et (2) de mesurer la résolution spectrale. Ensuite, il est expliqué quelques phénomènes qu'il est nécessaire de prendre en compte lors de l'analyse des résultats.

5.4.1 Utilisation d'un élément léger pour la calibration : le carbone

La calibration du spectromètre est effectuée à l'aide des raies d'émission d'un plasma de carbone et des seuils d'absorption de filtres de titane (Ti) et de polyimide placés entre la source plasma et l'entrée du spectromètre. En effet, la position et la finesse des raies du carbone permettent d'optimiser le réglage du réseau. La figure 5.10 présente deux spectres expérimentaux d'un plasma de carbone, mesurés avec la caméra CCD, sans (a) et avec (b)

un filtre de 160 nm de titane protégé par un filtre de 118,2 nm de polyimide. Nous observons les raies d'émission du carbone et différents seuils correspondant aux éléments atomiques composant les filtres (seuil K du carbone pour le filtre de polyimide et seuil L pour le filtre de titane).

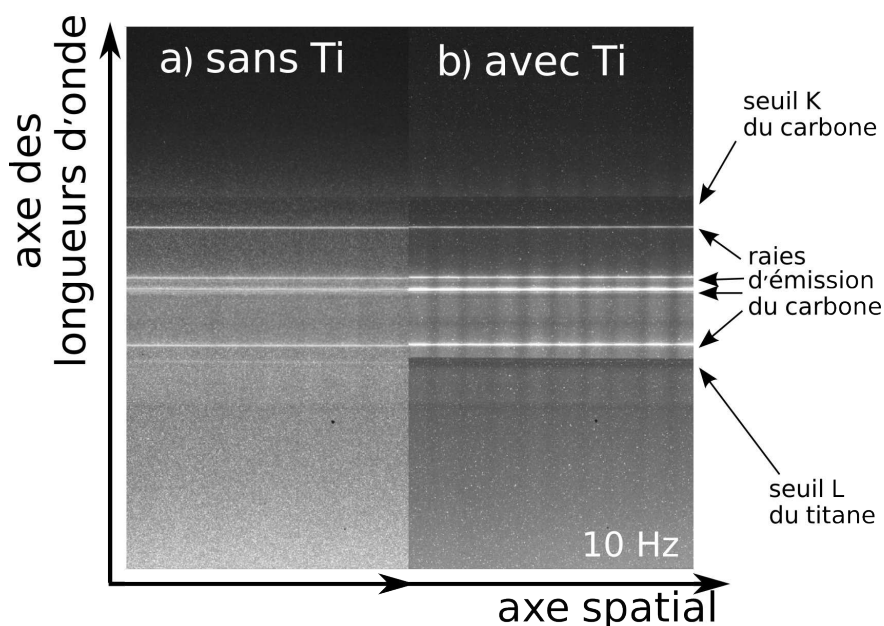


Figure 5.10 – Spectre intégré en temps émis par un plasma de carbone. a) spectre obtenu avec un filtre composé de 102,7 nm d'Al déposé sur 114 nm de polyimide, plus une protection d'un filtre de 117,3 nm de polyimide. b) spectre obtenu avec un filtre supplémentaire composé de 160 nm de titane et 118,2 nm de polyimide. 1500 tirs lasers ont été accumulés pour chaque mesure.

Pour obtenir une mesure absolue et calibrée en énergie des résultats, les images sont précisément analysées :

1. Le bruit de fond du détecteur est soustrait.
2. Un filtre numérique non-linéaire (filtre médian de rayon 1 ou 2) est utilisé pour enlever le bruit de fond dû au rayonnement X dur.
3. Une rotation de l'image est réalisée pour corriger le désalignement entre le réseau et le détecteur.
4. La conversion pixels longueurs d'onde est réalisée en prenant comme référence au minimum 3 points connus (raies d'émission ou seuils d'absorption).

Le bruit de fond est mesuré dans les mêmes conditions que les données. Pour cela, on utilise un filtre de plomb en entrée du spectromètre, qui permet de mesurer les fuites de lumière, non bloquées par le blindage. De cette façon, le bruit de fond tient compte des rayonnements laser et plasma, diffusés dans l'enceinte d'interaction.

Deux coupes, obtenues à partir des graphiques de la figure 5.10, sont présentées à la figure 5.11. La courbe du haut correspond à la mesure sans filtre de titane et celle du bas avec le filtre. Les séries hydrogénoïde (C^{5+}) et héliumoïde (C^{4+}) des raies d'émission du carbone sont identifiées sur la figure. Notre résultat est très similaire à celui obtenu par Fujikawa et al. (1998) avec le même réseau et une source de rayonnement X produite par laser, ayant une durée d'impulsion picoseconde.

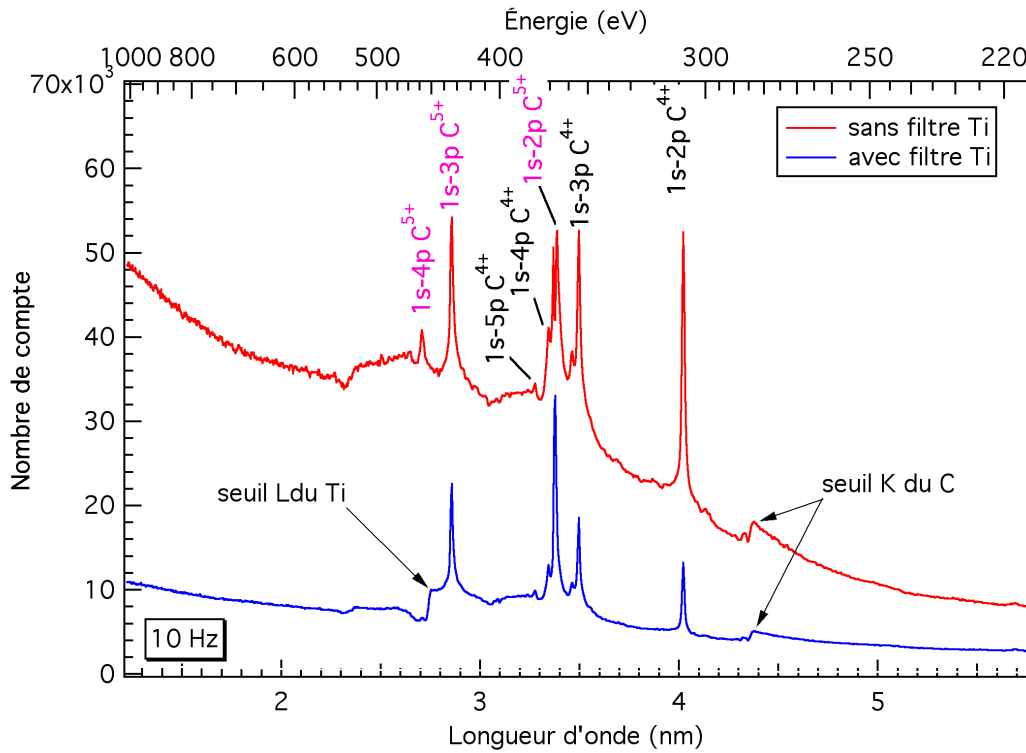


Figure 5.11 – Coupes des spectres d'émission du carbone intégré sur 800 pixels, provenant de la figure 5.10. La courbe du haut (fig. 5.10a) est mesurée avec un filtre composé de 102,7 nm d'Al déposé sur 114 nm de polyimide, plus une protection d'un filtre de 117,3 nm de polyimide. La courbe du bas (fig. 5.10b) est mesurée en ajoutant un filtre supplémentaire composé de 160 nm de titane et 118,2 nm de polyimide.

L'atténuation d'intensité observée entre les deux courbes, résultant de la présence des filtres, correspond à la transmittance des deux filtres (titane et polyimide). Une estimation de la résolution spectrale expérimentale peut être déduite de la largeur à mi-hauteur d'une raie d'émission du carbone. Nous avons mesuré une résolution expérimentale $\Delta E/E = 3,4 \times 10^{-3}$, en utilisant la largeur de la raie hydrogénoïde $1s^2-1s2p$ ($\Delta\lambda \sim 1,36 \times 10^{-2}$ nm). Autour des seuils du VO_2 à 500 eV ($\sim 2,5$ nm), nous obtenons une résolution de 2 eV environ.

Le tableau 5.2 présente une comparaison entre les valeurs théoriques⁵ et les valeurs mesurées des raies d'émission du carbone ionisé 4 et 5 fois. Ces valeurs sont en très bon accord.

⁵www.NIST.gov

	C^{4+}				C^{5+}		
	$1s^2 - 1s2p$	$1s^2 - 1s3p$	$1s^2 - 1s4p$	$1s^2 - 1s5p$	$1s - 2p$	$1s - 3p$	$1s - 4p$
Théorique (nm)	4,0268	3,4973	3,3426	3,2773	3,3734	2,8466	2,6990
Mesurée (nm)	4,02	3,50	3,34	3,28	3,39	2,86	2,71

Tableau 5.2 – Tableau montrant les correspondances entre les longueurs d’onde mesurées, et les longueurs d’onde théoriques.

Le support de cible permet de changer de cible avec une précision mécanique inférieure à $20\ \mu\text{m}$. À 500 eV, ce déplacement implique un décalage maximum de $1\ \mu\text{m}$ le long de l’axe des longueurs d’onde. De plus, le décalage maximum du plan spectral le long de l’axe de propagation de rayonnement X est de $8\ \mu\text{m}$ (toujours à 500 eV). Cela correspond à une très faible défocalisation, qui est négligeable par rapport aux distances de réglages initiaux mises en jeu (distance source-plan $\simeq 500\ \text{mm}$).

5.4.2 Résolution spectrale théorique

À 500 eV, nous avons mesuré une résolution spectrale $\Delta E/E = 3,4 \times 10^{-3}$, qui est supérieure à celle donnée par le constructeur pour le réseau : $\Delta E/E = 4,3 \times 10^{-4}$. Ce paragraphe détaille les différents effets qui pourraient dégrader la résolution, comme la taille de la source de rayonnement X, qui augmente en fonction du temps pendant la détente du plasma, ou la taille des pixels de la caméra CCD. C’est cette dernière qui limite notre résolution.

5.4.2.1 Influence de la taille de la source

Le laser est focalisé à l’aide d’un miroir parabolique $f/3$, qui permet d’obtenir une tache focale de $10\ \mu\text{m}$ de diamètre. En utilisant la relation de dispersion du réseau plan, il est possible d’estimer la résolution théorique due à la taille de source. On utilise la formule suivant :

$$m\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (5.1)$$

où m est l’ordre de dispersion (dans notre cas $m = 1$), λ la longueur d’onde, d la distance entre deux pas du réseau ($4,16 \times 10^{-1}\ \text{mm}$), α l’angle d’incidence ($88,7^\circ$), et β l’angle de

dispersion. Pour β constant, nous obtenons une fonction de dispersion :

$$R = \frac{\delta\lambda}{\lambda} = \frac{\delta E}{E} = \frac{d \cos \alpha}{\lambda} \delta\alpha \quad (5.2)$$

où $\delta\alpha = \frac{\text{diamètre tache focale}}{\text{distance source-réseau}} = \frac{10 \times 10^{-6}}{237 \times 10^{-3}}$. À 500 eV ($\sim 2,5$ nm), nous obtenons $\Delta E/E = 1,6 \times 10^{-7}$, ce qui est très inférieur à notre résolution expérimentale.

La taille de la source augmente au cours de la détente du plasma. Ce dernier se détend dans le vide à la vitesse du son $c_s = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_i}}$, où k_B est la constante de Boltzmann, T_e est la température électronique, et m_i la masse ionique. La taille de la source augmente en fonction du temps. Pour notre plasma de carbone, $m_i = 2 \times 10^{-26}$ kg, et T_e n'est pas supérieure à 100 eV. On obtient une vitesse maximum $c_s = 2,8 \times 10^4$ m/s. Au bout de 10 ps, le plasma se détend de 280 μm . À 500 eV, nous obtenons $\Delta E/E = 9 \times 10^{-6}$. Cela reste inférieur à notre résolution.

5.4.2.2 Influence de la taille des pixels

Les images intégrées temporellement sont réalisées avec une caméra CCD dont la taille d'un pixel est de 20 μm . La surface du détecteur fait 26,8 mm pour une gamme spectrale de 4,6 nm. On obtient $\delta\lambda = 3,43 \times 10^{-1}$ nm pour un pixel. En prenant la résolution du détecteur égale à la dimension d'un pixel, nous obtenons à 500 eV :

$$\frac{\Delta E}{E} = 1,4 \times 10^{-3} \quad (5.3)$$

Cette valeur est proche de celle mesurée.

5.4.3 Quelques particularités à prendre en compte dans l'analyse des images

Comme on a pu le voir à la figure 5.10, on note la présence de lignes verticales, réparties le long de l'axe spatial. La figure 5.12-a présente un résultat obtenu à partir d'une cible de tantale, où un filtre de polyimide était présent. Les différents seuils sont identifiés (K de l'oxygène et du carbone), de même que les lignes verticales. La figure 5.12-b montre une coupe réalisée le long de l'espace et intégré sur 100 pixels afin d'augmenter le rapport signal sur bruit (carré rouge de la figure 5.12-a). On remarque que cette fluctuation d'intensité est périodique, de période d'environ 80 pixels.

La section 5.3 signale la présence d'un filtre d'aluminium, déposé sur une grille de nickel, en entrée du spectromètre afin de l'isoler de la lumière visible. Cette dernière est composée de

fil de $1\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre, espacés de $360\text{ }\mu\text{m}$. En évaluant les distances mises en jeu, le pas de la grille correspond à la période de 80 pixels visible sur les images, le long de l'axe spatial. Dans la suite, lorsque l'on intègre sur plusieurs dizaines de pixels, il faut faire attention au nombre de lignes verticales comptées dans la fenêtre d'intégration.

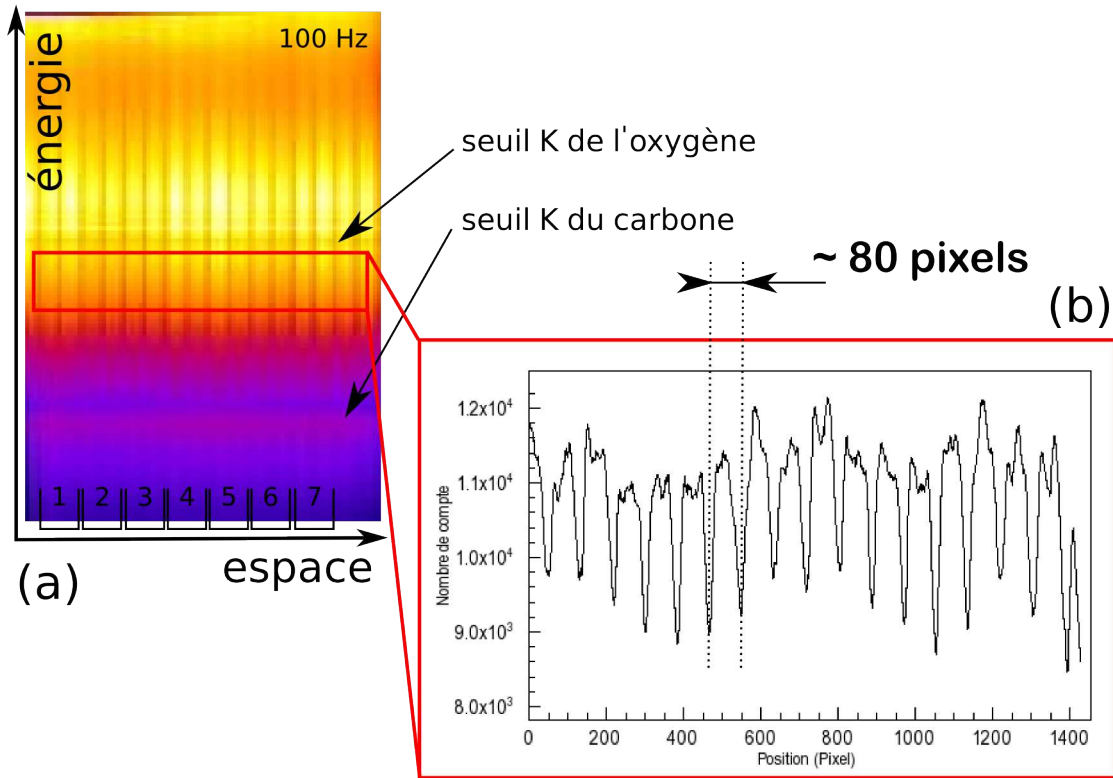


Figure 5.12 – Spectre obtenu à partir d'une cible de tantale, présentant les lignes verticales dues à l'absorption par la grille de nickel qui est présente sur les filtres d'aluminium en entrée du spectromètre.

L'alignement entre le plan du réseau et le plan de la caméra CCD n'est pas forcément bien ajusté (dû à la précision de l'ajustement mécanique du spectromètre). C'est pourquoi il est nécessaire d'effectuer une rotation de l'image, afin d'effectuer des coupes perpendiculaires aux raies spectrales pour ne pas détériorer la résolution.

Ainsi, la rotation de la figure 5.12 a été optimisée pour un angle de $-0,8^\circ$. Afin d'ajuster la rotation pour trouver cette valeur, on utilise la position des seuils comme référence. Pour cela, on réalise différentes coupes le long de l'axe des énergies, notées 1, 2, 3, etc... sur la figure 5.12-a, et intégrées spatialement sur 100 pixels environ. Ensuite, on divise toutes les zones par la première, et on obtient les spectres présentés sur la figure 5.13 (2/1, 3/1, 4/1, etc...). Si on note la présence des seuils, la rotation n'est pas ajustée, alors on recommence la procédure pour un autre angle.

Tout d'abord, on remarque sur la figure que les variances des signaux sont faibles. La lente

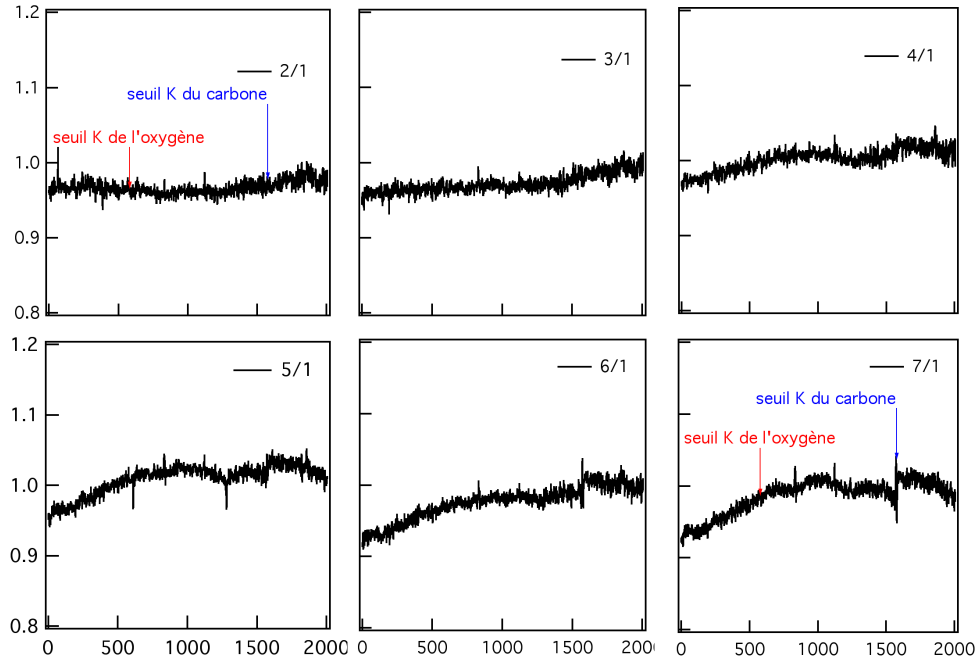


Figure 5.13 – Rapport des spectres entre les différentes zones présentées dans la figure 5.12.

dérive observée entre la zone 1 et la zone 7 montre que la réflectivité du réseau ne semble pas être homogène. Autrement dit, la répartition spectrale de l'intensité entre 2 zones ne varie pas beaucoup, mais il y a une certaine différence entre deux zones éloignées. Lors de l'analyse des résultats, il faudra prendre en compte la différence de réflectivité du spectromètre si l'on souhaite comparer deux zones éloignées.

On remarque aussi que, lors de la rotation, le seuil K de l'oxygène est parfaitement compensé, c'est-à-dire qu'on ne le voit pas (vers le pixel 600). Par contre, le seuil K du carbone reste encore visible (pixel 1500). Cet effet est certainement dû à une rotation selon l'axe des énergies du plan de la caméra CCD. Si ce plan n'est pas parfaitement perpendiculaire au plan du réseau, une rotation de l'image ne suffit plus. Il faudrait déformer l'image de manière non linéaire, ce qui n'est pas trivial à réaliser numériquement. Comme notre étude porte sur la zone d'absorption du VO_2 (environ 200 pixels autour du seuil K de l'oxygène), cet effet n'est pas pris en compte lors de l'analyse des résultats. Par contre, il faut bien faire attention à ajuster la rotation de l'image au niveau de la zone d'absorption du VO_2 .

5.5 Caractérisation de la source X

Cette section présente une étude d'optimisation de la source de rayonnement X. Celle-ci doit fournir un continuum, brillant, et court. Tout d'abord, différents spectres en fonction

du numéro atomique sont présentés, puis la brillance optimale mesurée est comparée à celle obtenue sur un synchrotron. Finalement, une caractérisation temporelle de la source à l'aide d'une caméra à balayage de fente est présentée.

5.5.1 Utilisation d'éléments lourds : spectre continu

Pour réaliser une expérience de spectroscopie d'absorption, nous avons besoin d'une source de rayonnement X continue, ayant un rapport signal sur bruit adapté. Pour observer un changement dans la structure du VO_2 , le rapport signal sur bruit doit être inférieur à 0,5 %. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.1.1, les matériaux de numéro atomique (Z) élevé ont un spectre de raies très fourni. Il y a un très grand nombre de transitions qui peuvent se chevaucher. Il est donc possible d'obtenir un quasi-continuum de rayonnement. Nous avons donc étudié le rayonnement émis par différentes cibles, en augmentant le numéro atomique, afin d'obtenir un rayonnement X continu le plus brillant possible.

La figure 5.14 présente les spectres d'émission de plasmas pour différents éléments : le molybdène ($Z=42$), l'argent ($Z=47$), le lanthane ($Z=57$) et le tantale ($Z=73$). Les courbes sont arbitrairement décalées le long de l'axe vertical pour ne pas se chevaucher.

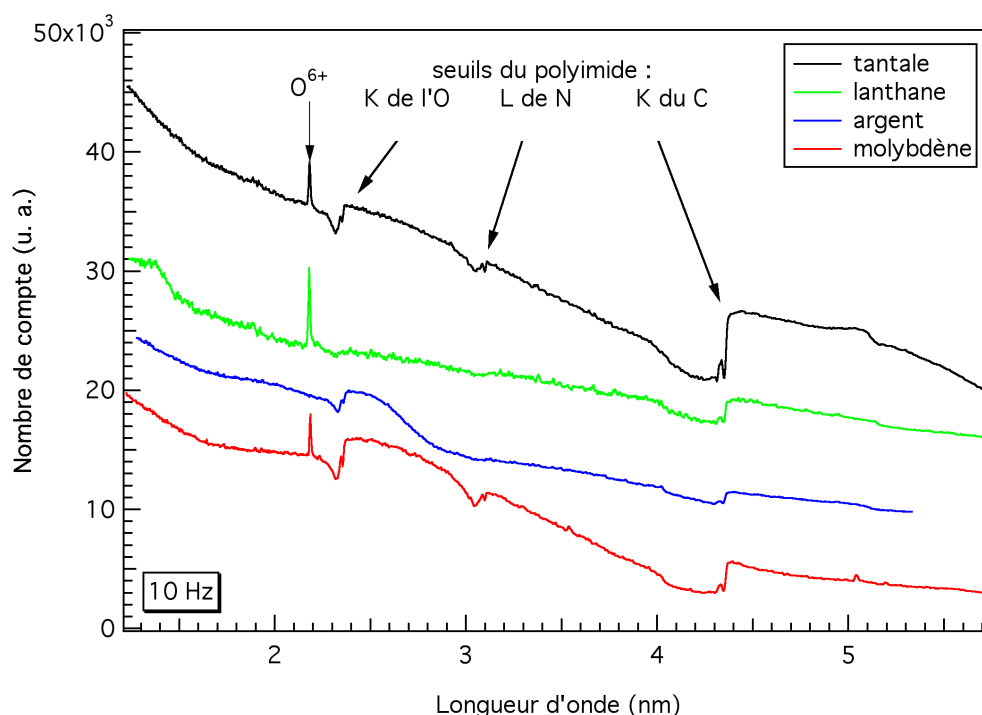


Figure 5.14 – Spectre de rayonnement X pour différents éléments : le molybdène ($Z=42$), l'argent ($Z=47$), le lanthane ($Z=57$) et le tantale ($Z=73$).

Nous observons sur les différents spectres les 3 coupures du filtre de polyimide (carbone,

azote et oxygène). Il faut noter que le spectre obtenu à l'aide d'une source de lanthane à un rapport signal sur bruit trop faible, ne permettant d'observer que la coupure du carbone. Nous observons aussi une raie d'émission à 2,16 nm, présente sur trois des quatre spectres (Mo, La, et Ta). Cela correspond à la transition $1s^2-1s2p$ de l'oxygène ionisé 6 fois (O^{6+}). En effet, il est possible que les cibles soient légèrement oxydées. De plus, le lanthane est fortement oxydable, et l'on remarque que la transition est forte pour ce dernier.

Chaque spectre est obtenu avec différents paramètres (i.e. intensité laser et nombre de tirs), optimisés pour obtenir le meilleur rapport signal sur bruit. C'est-à-dire que l'intensité laser est ajustée pour ne pas produire trop de rayonnement X dur (qui dégrade le signal), tout en ayant un nombre de photons suffisant. Le tableau 5.3 présente les différents paramètres utilisés pour réaliser les spectres, ainsi que le rapport signal sur bruit mesuré pour deux longueurs d'onde différentes, proches des seuils K du carbone et de l'oxygène. Le meilleur rapport pour les deux énergies est obtenu avec la cible de tantale.

élément	Intensité laser (W/cm ²)	nombre de tirs	Rapport signal/bruit	
			seuil K du C	seuil K de O
Ta	7,6×10 ¹⁷	1200	0,3 %	0,22 %
La	8,8×10 ¹⁷	1200	0,4 %	0,23 %
Ag	1,2×10 ¹⁸	1200	0,6 %	0,3 %
Mo	8×10 ¹⁸	4500	0,57 %	0,23 %

Tableau 5.3 – Paramètres utilisés pour obtenir les spectres de la figure 5.14 (intensité laser et nombre de tirs), et le rapport signal sur bruit obtenu à deux longueurs d'onde différentes.

Dans la région du VO₂, le molybdène présente également un très bon rapport signal sur bruit, mais ce dernier a été obtenu en accumulant sur presque 4 fois plus de tir qu'avec le tantale. Nous avons donc choisi d'utiliser une cible de tantale pour réaliser la source de rayonnement X lors des expériences de spectroscopie d'absorption dans du VO₂.

5.5.2 Brillance de la source X

La brillance de la source de rayonnement X peut être calculée en prenant en compte l'efficacité quantique et le facteur de gain du senseur de la caméra CCD, la réflectivité du réseau, l'angle de détection, et la transmission des filtres.

Le tableau 5.4 présente le nombre de photons, le flux, et la brillance observés pour trois énergies différentes (autour des seuils K du carbone, K du nitrure, et L du vanadium), en intégrant sur 20 pixels et en accumulant sur 6000 tirs (1 minute à 100 Hz). Au niveau des seuils du VO₂, nous obtenons une brillance de $5,6 \times 10^7$ photons/s.mrad².mm²/0.1%.

En supposant une distribution de Poisson du bruit de photons, on peut déduire le rapport signal sur bruit. Le tableau indique également le temps d'accumulation qu'il faudrait réaliser afin d'atteindre 1 % de rapport signal sur bruit.

	Seuil K du carbone 284,2 eV	Seuil K de l'azote 409,9 eV	Seuil L du vanadium 519,8 eV
Nombre de photons	1172	2537	2445
Flux (photons/str/tir/eV)	$1,3 \times 10^8$	$1,5 \times 10^8$	$5,6 \times 10^7$
Brillance (photons/s.mrad ² .mm ² /0,1 %)	$4,7 \times 10^8$	$7,8 \times 10^7$	$5,6 \times 10^7$
Rapport signal sur bruit (%)	2,9	2,0	2,0
Temps d'accumulation pour obtenir 1% de S/B (minutes)	8,5	4	4

Tableau 5.4 – Récapitulatif du signal obtenu pour 3 longueurs d'onde différentes, en terme de nombre de photon, rapport signal sur bruit, temps d'accumulation pour obtenir 1 % de rapport signal sur bruit, flux, et brillance.

Nous comparons la brillance obtenue avec celles produites à partir de synchrotron ALS. À 500 eV, le flux de rayonnement X est 8 ordre de grandeur supérieur : $3,0 \times 10^{15}$ photons/s.mrad².mm²/0.1% sur la ligne de lumière 5.3.1 de l'ALS. Cela s'explique par le fait que notre source, produite par interaction laser-matière, émet dans 4π stéradian. L'angle solide collecté par le spectromètre ne récolte qu'une faible portion du rayonnement X émis. Par contre, pour obtenir un rayonnement synchrotron ultra-court en utilisant la technique du *slicing*, la brillance décroît de plus de 6 ordres de grandeur. Elle est de 3×10^9 photons/s.mrad².mm²/0.1% sur l'onduleur ALS (ligne de lumière 6.3.1).

Notre source ultra-courte, dont la brillance est 60 fois inférieur à celle produite par la technique du *slicing*, présente d'autres avantages :

- Elle permet la synchronisation temporelle de deux événements : source de rayonnement X et l'excitation du VO₂, à partir du même vecteur : l'impulsion laser. Il faut noter que la technique du *slicing* permet également une bonne synchronisation temporelle, mais est beaucoup plus compliquée à mettre en place.

- Elle présente une durée d'émission très courte de l'ordre de la dizaine de picosecondes (voir section suivante).
- Il est possible d'obtenir tout le spectre absorbé résolu en temps en un tir, ce qui n'est pas le cas des récentes études effectuées utilisant des sources synchrotrons effectuant un balayage en fréquence (Cavalleri et al., 2004, 2005).

5.5.3 Caractérisation temporelle

Les mesures résolues en temps sont effectuées avec la caméra à balayage de fente PX1 couplée au spectromètre. Elles sont réalisées en mode accumulation au moyen de commutateurs optiques, c'est-à-dire que la caméra est synchronisée avec l'impulsion laser. Cela permet d'augmenter sa dynamique afin d'améliorer le rapport signal sur bruit (voir section 3.3.2).

Les spectres d'émission expérimentaux sont présentés à la figure 5.15. Ils montrent l'évolution temporelle (a) d'un spectre de carbone, accumulé sur 3 000 tirs lasers, et (b) d'un spectre de tantale, accumulé sur 150 tirs lasers. Nous avons pu déterminer la résolution temporelle du système en utilisant le spectre de tantale, et la résolution spectrale en utilisant le spectre de carbone. Le balayage utilisé permet d'obtenir une dispersion temporelle de 250 femtosecondes/pixel.

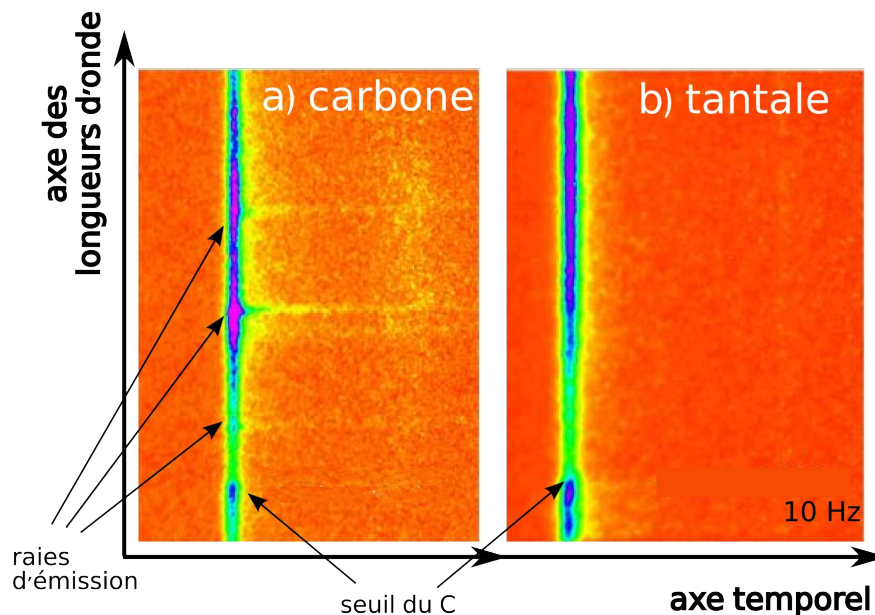


Figure 5.15 – Spectres d'émission résolus en temps (a) du carbone et (b) du tantale, mesurés à l'aide de la caméra à balayage de fente PX1, corrigés de la courbure induite par la caméra. Ils sont accumulés respectivement sur 3000 et 150 tirs lasers. Le seuil K du carbone, dû au filtre de polyimide, est clairement visible sur les deux spectres.

La figure 5.16 présente différentes coupes de la figure 5.15-a, en fonction des longueurs d'onde et pour différents temps. Les raies hydrogénoïdes et héliumoïdes sont observées durant quelques dizaines de picosecondes, alors que le continuum ne dure que quelques picosecondes. L'évolution temporelle des raies d'émission du carbone, mesurées dans notre expérience, est très similaire à celle obtenue par Andiel et al. (2001). La résolution spectrale expérimentale, déduite à partir de la largeur à mi-hauteur de la raie d'émission héliumoïde $1s^2-1s2p$, est inférieure à celles des spectres intégrés en temps : $\Delta E/E = 9 \times 10^{-3}$. Cependant, le seuil K du carbone dû au filtre de polyimide est clairement observé à la figure 5.15 (a et b). Cette perte de résolution, d'un facteur 3 par rapport aux images obtenues avec la caméra CCD, est principalement due au MCP, galette de micro-canaux dont le diamètre de $75 \mu\text{m}$ est environ 4 fois plus grand que la taille du pixel de la caméra CCD.

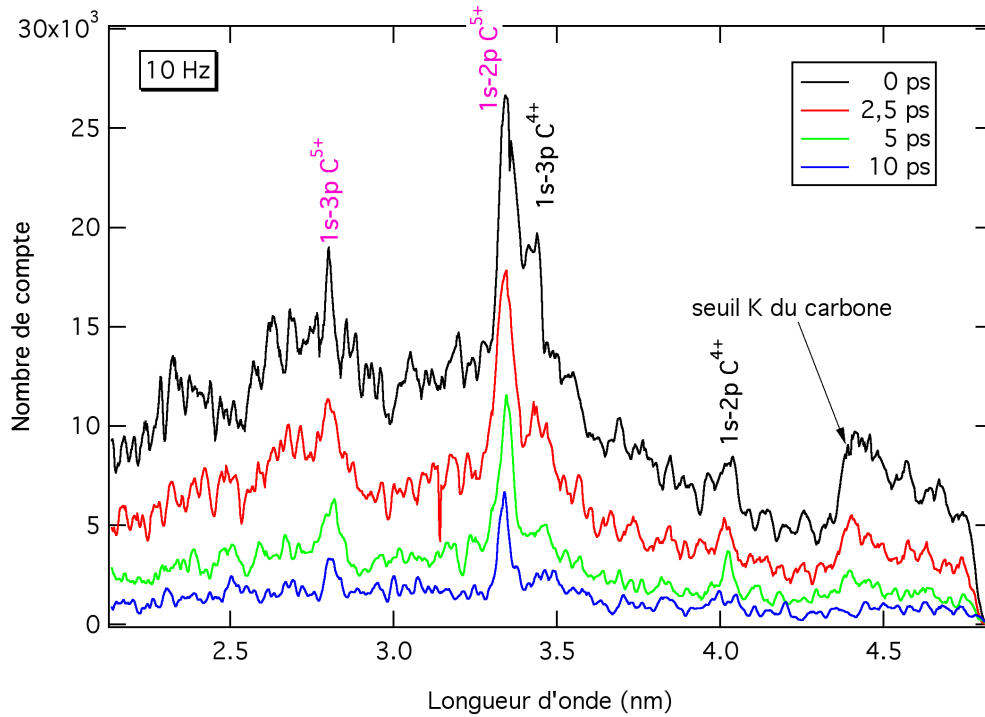


Figure 5.16 – Coupes en fonction du temps du spectre du carbone de la figure 5.15-a. On observe les raies d'émission du carbone et le seuil K du carbone dû au filtre de polyimide.

La brillance de la source de tantale est d'un ordre de grandeur plus grande que celle de la source de carbone, le nombre de tir accumulé pour obtenir cette image a été fortement diminué (150 tirs par rapport aux 3000 tirs du spectre de carbone). Dans ce cas, il serait possible d'améliorer la résolution spectrale en retirant le MCP puisque la source est suffisamment intense. Le rapport signal sur bruit peut être estimé à partir du nombre de coups mesurés. Il est de l'ordre de 1,2 %, et peut être facilement amélioré en augmentant le nombre de tirs accumulés, afin d'obtenir le rapport signal sur bruit de 0,5 % nécessaire pour suivre l'évolution de la transition de phase. De cette manière, il serait possible d'étudier l'évolution de la

transition de phase résolue en temps. Par contre, il est nécessaire d'améliorer la résolution spectrale.

Résolution temporelle

La figure 5.17 présente une coupe en fonction du temps du spectre d'émission du tantale de la figure 5.15-b. À mi-hauteur, la durée d'émission est d'environ 10 picosecondes.

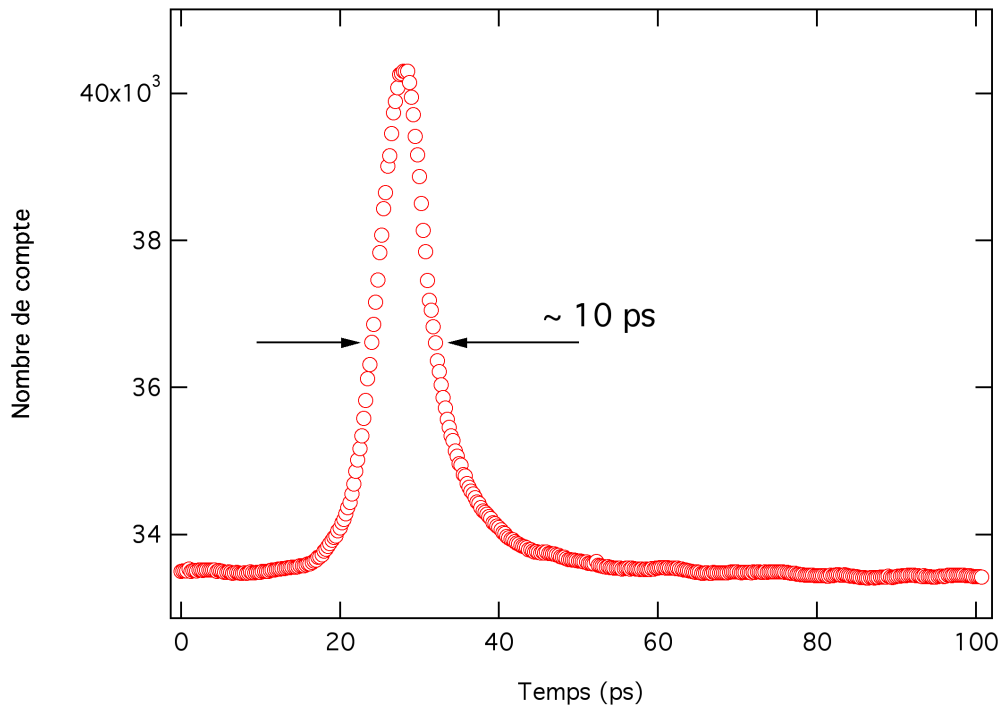


Figure 5.17 – Coupe suivant l'axe temporel du spectre de tantale, mesuré par une caméra à balayage de fente, et présenté sur la figure 5.15-b.

La résolution temporelle est évaluée en mesurant le temps de montée (10%-90%) du spectre de rayonnement X. Il est d'une vingtaine de pixels, ce qui nous donne une résolution temporelle autour de 5 ps en mode accumulation. Il a été démontré qu'il est possible d'atteindre une résolution temporelle de 1,2 ps (Belzile et al., 2002; Gallant et al., 2000).

Nous n'avons pu atteindre cette résolution pour deux raisons : (1) la caméra CCD n'était pas plaquée correctement sur le MCP, et (2) compte tenu de la dimension du réseau, les chemins optiques pour une longueur d'onde ne sont pas les mêmes. Ces deux problèmes dégradent la résolution temporelle.

En effet, le réseau a une dimension de 30 x 50 mm. Cela implique que les trajets optiques sont différents pour une même longueur d'onde (voir figure 5.18). Cela limite la résolution

temporelle de 0,7 à 3,3 ps en fonction de la longueur d'onde (1 - 5 nm). Pour obtenir la résolution théorique finale, il faut prendre en considération la résolution temporelle propre de la caméra à balayage de fente qui est de 1,2 ps :

$$R_{temp} = \sqrt{R_{Streak}^2 + R_{Reseau}^2}$$

On obtient une résolution temporelle minimum d'environ 1,4 ps à 5 nm, et d'environ 3,5 ps à 1 nm.

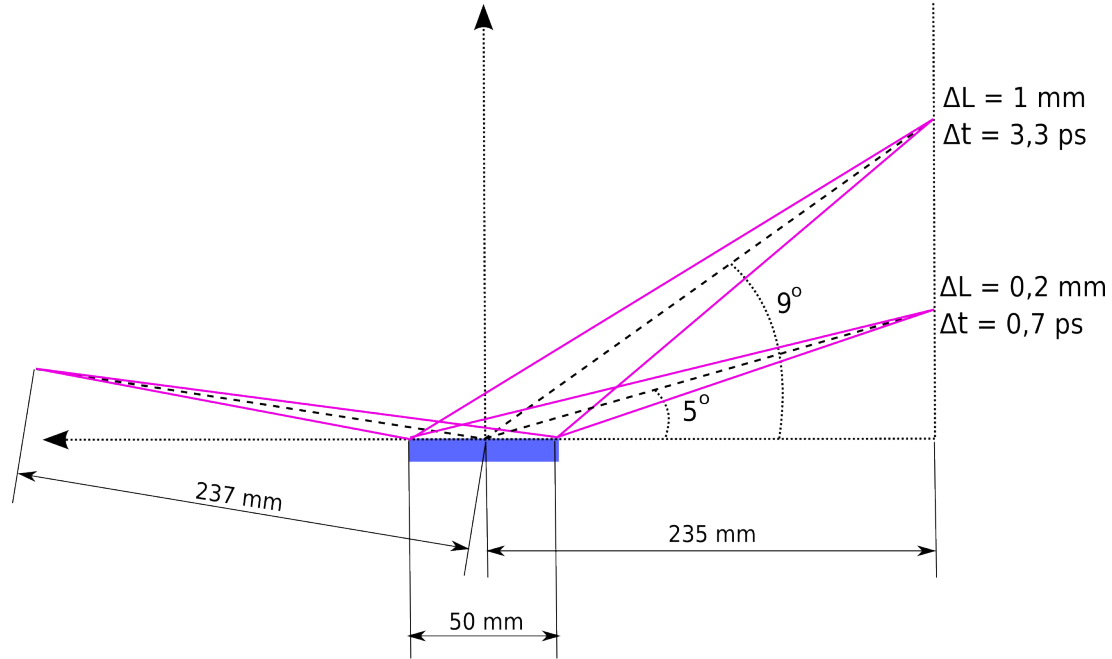


Figure 5.18 – Schéma représentant la perte de résolution temporelle du réseau, due aux différents trajets optiques.

5.6 Absorption de rayonnement X dans du VO₂

Cette section présente les résultats obtenus sur l'absorption de rayonnement X dans du dioxyde de vanadium. Tout d'abord, une mesure en statique dans la phase basse température est présentée. La structure de XANES y est clairement observée et est comparée avec des mesures précédentes. Enfin, une mesure en dynamique par pompage optique du VO₂ est présentée, et permet de valider l'utilisation de source par laser pour réaliser ce type d'étude.

5.6.1 Mesure en statique

La figure 5.19 présente l'absorbance mesurée d'un échantillon de 130 nm de VO₂ dans sa phase basse température (sur le système 100 Hz), et l'absorbance théorique pour la même

épaisseur. La spectroscopie d'absorption nous permet d'observer séparément la localisation des orbitales moléculaires proche du niveau de Fermi (voir figure 5.4). Sur le spectre mesuré, on identifie les pics correspondant aux transitions depuis les niveaux atomiques $V2p_{3/2}$ et $V2p_{1/2}$ vers les niveaux moléculaires inoccupés, qui sont respectivement à 520,5 eV et 526 eV. Nous observons également la transition depuis le niveau $O1s$ vers les mêmes bandes, à 532 eV. Nos mesures ne permettent pas de discriminer les contributions des différentes bandes $3d_{||}$, $3d_{\pi}$, et $3d_{\sigma}$. Aussi, on observe deux raies d'émission de l'oxygène, qui sont dues à l'oxydation de la cible de tantale.

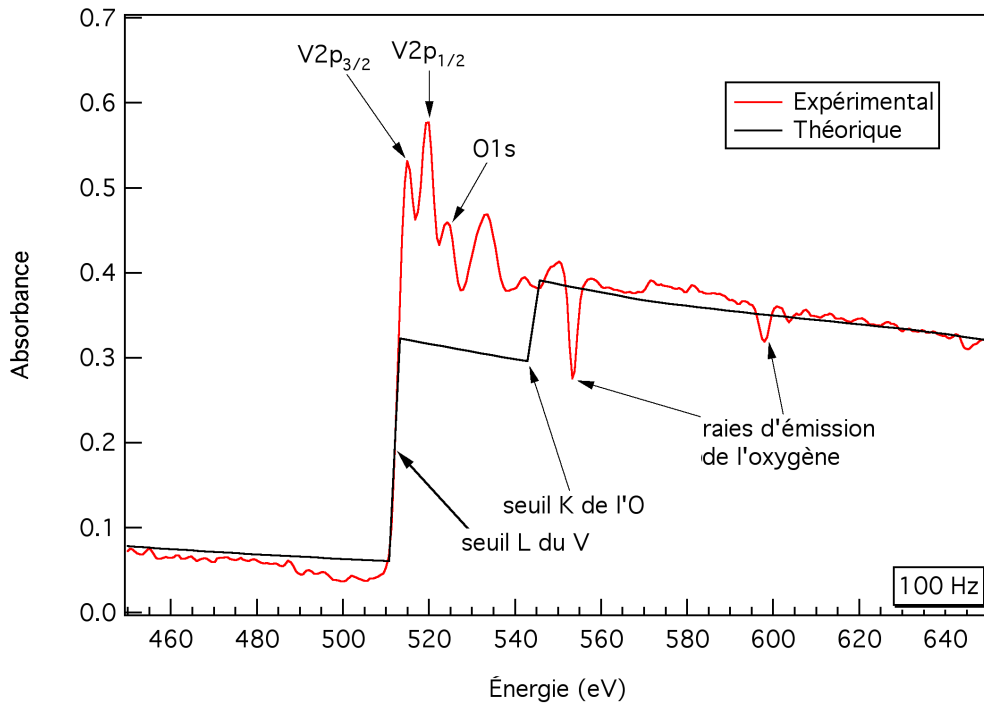


Figure 5.19 – Absorbance mesurée et théorique d'un échantillon de 130 nm de VO_2 , dans sa phase basse température.

L'absorbance est calculée de la manière suivante : $A = 1 - T$ avec $T = I/I_0 = \exp(-\mu \cdot z)$, où T est la transmittance, I et I_0 sont respectivement les intensités transmise et incidente, μ est le coefficient d'absorption, et z l'épaisseur de l'échantillon.

Le spectre de référence I_0 n'est pas mesuré mais déduit de l'intensité transmise $I_{mesurée}$, en prenant en compte l'absorption théorique de la membrane de VO_2 (voir section 2.1.2). Autrement dit, le spectre mesuré $I_{mesurée}$ est constitué de la manière suivante :

$$I_{mesurée} = I_{source\ X} \cdot T_{VO_2} \cdot T_{Si_3N_4} \cdot T_{autres\ filtres} \quad (5.4)$$

où $I_{source\ X}$ est l'émission de la source de rayonnement X, T_{VO_2} , $T_{Si_3N_4}$, et $T_{autres\ filtres}$

sont respectivement les transmissions des filtres de VO₂, de Si₃N₄, et des autres filtres comme ceux d'aluminium ou de polyimide. Pour extraire la transmission du VO₂, on calcule $I_{\text{mesurée}}/T_{\text{VO}_2\text{-théorique}}$. Ce spectre est ensuite lissé par une régression d'ordre 3, et permet d'obtenir $I_{0\text{-théorique}}$:

$$I_{0\text{-théorique}} = \text{lissage} \left(\frac{I_{\text{mesurée}}}{T_{\text{VO}_2\text{-théorique}}} \right) \quad (5.5)$$

Cette méthode permet de calculer le signal de référence ne prenant pas en compte la structure de XANES du VO₂. De plus, le signal n'ajoute pas de bruit supplémentaire. On trace ensuite $A = 1 - I_{\text{mesurée}}/I_{0\text{-calculée}}$, présenté à la figure 5.19.

Les structures du spectre proches des seuils L du vanadium et K de l'oxygène peuvent être comparées aux spectres de référence obtenus par Abbate et al. (1991), réalisé sur un monocristal de VO₂ (voir figure 5.5). Il est important de souligner que généralement, les mesures dépendent de la méthode de détection choisie, la polarisation du rayonnement X (les sources produites par laser sont non-polarisées), et le type d'échantillon (dans notre cas polycristallin).

<div>Niveaux atomiques</div> <div>Niveaux moléculaires</div>	Vanadium (eV)		Oxygène (eV)	
	2p _{3/2} -3d	2p _{1/2} -3d	1s-3d _π	1s-3d _σ
Nos mesures ± 1 eV	520,5	526	532	
Abbate et al. ± 50 meV	519	525,5	530	532,7

Tableau 5.5 – Récapitulatif des positions en énergie des différents pics correspondant aux différentes bandes d'énergie électronique mesurées (figure 5.19), et la comparaison avec celles mesurées par Abbate et al. (1991).

Ces spectres de référence ne sont donc pas directement comparables. De plus, la résolution en énergie de ces spectres est de 100 meV, à comparer à 2 eV dans notre étude, ce qui moyenne les structures observées. Par contre, nous pouvons détailler les différences observées. Tout d'abord, nous n'observons pas de structure dans le seuil du vanadium, ce qui peut être dû à notre résolution spectrale limitée. Par contre, les positions des pics sont mesurées aux mêmes énergies. Le tableau 5.5 présente un résumé des positions mesurées dans notre expérience, et celles obtenues par Abbate et al..

5.6.2 Mesure en dynamique

Cette section décrit l'absorption du rayonnement X dans du VO₂, chauffé par une impulsion sub-picoseconde, et sondé avec un délai de 500 ps entre la pompe et la sonde. La synchronisation temporelle entre ces deux impulsions a été réalisée à l'aide d'une caméra à balayage de fente, fonctionnant dans le visible et ayant une résolution temporelle de 2 ps. Cette synchronisation a été réalisée à pression atmosphérique (c'est-à-dire avec l'enceinte expérimentale à l'air) et à bas flux laser. Le délai « zéro » a été obtenu avec une précision de 20 ps environ.

La tache focale du faisceau laser d'excitation est présentée à la figure 5.20-a, dans le plan focal de l'échantillon. Son diamètre est de 950 μm , et a une fluence d'excitation de 14 mJ/cm². Le faisceau laser a été diaphragmé pour obtenir une tache focale présentant une bonne qualité spatiale.

L'échantillon sondé est une membrane composée de 130 nm de VO₂ déposé sur 100 nm de nitrure de silicium (Si₃N₄). La figure 5.20-b présente l'échantillon dans lequel sont ouvertes trois membranes : seule celle du milieu est composée de VO₂, les deux autres étant percées. L'échantillon est positionné de telle sorte que seule la partie composée de VO₂ soit sondée. Le rayonnement X, collecté par le spectromètre, correspond à une aire d'environ 1 \times 7 mm² dans le plan de l'échantillon. La partie droite de la membrane centrale est excitée par l'impulsion infra-rouge (800 nm), 500 picosecondes avant la source de rayonnement X. Cela permet de mesurer, en même temps, le VO₂ dans ses deux phases.

De plus, on remarque un changement de réflectivité autour de la membrane de VO₂. En effet, la réflectivité est plus importante sur la membrane que sur le substrat de silicium.

La figure 5.20-c présente le spectre mesuré par la caméra CCD. Il est résolu spectralement (en énergie), et spatialement. Cette mesure a été réalisée en accumulant pendant 3 minutes et 10 secondes avec le laser cadencé à 100 Hz, afin d'obtenir un rapport signal sur bruit de 0,4 % (au niveau du seuil L du vanadium). Il faut noter que la membrane est restée intacte après la mesure. Les différents seuils d'absorption sont clairement identifiés. Ils correspondent aux filtres placés dans le parcours du rayonnement X. De plus, les correspondances entre la partie excitée et deux zones non-excitées sont indiquées (figures b et c). À première vue, on ne remarque aucun changement entre les différentes zones.

La figure 5.21 présente l'absorbance, pour les trois différentes zones présentées à la figure 5.20. Le signal de référence (I_0) a été estimé à l'aide d'une seconde image, réalisée sans échantillon. Cette image est obtenue dans les mêmes conditions, c'est-à-dire source X de tantale et filtres identiques (sauf la membrane de VO₂). On note qu'il faut prendre en compte la présence du Si₃N₄ lors de l'analyse, en divisant la transmission mesurée à l'aide de la transmission théorique du Si₃N₄. La transmission ainsi obtenue est ensuite normalisée avec la transmission

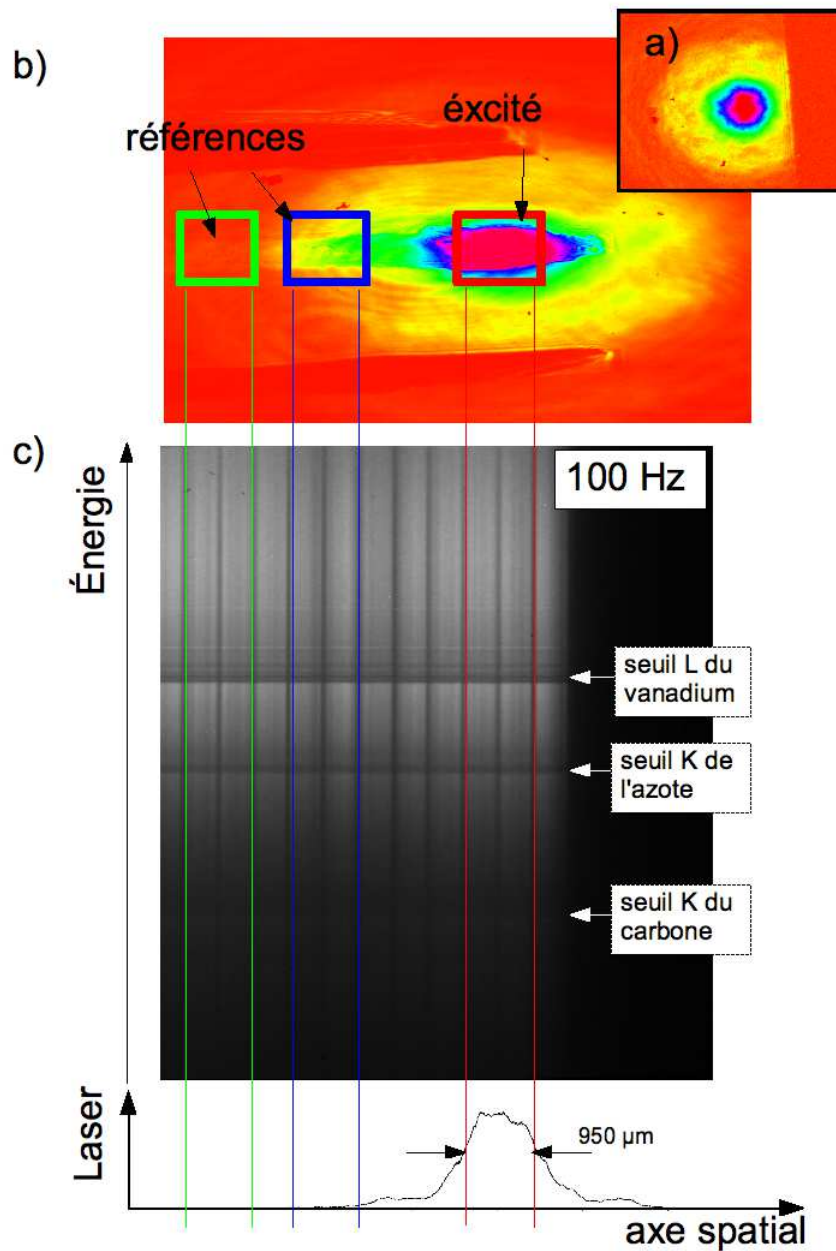


Figure 5.20 – (a) Image présentant la tache focale du faisceau d’excitation dans le plan de l’échantillon. (b) Échantillon présentant trois membranes de $\text{VO}_2/\text{Si}_3\text{N}_4$, dont seule celle du milieu est sondée par le rayonnement X. La partie droite de la membrane centrale est excitée par l’impulsion de chauffage, 500 picosecondes avant la source de rayonnement X. (c) Spectre spatio-spectral mesuré par la caméra CCD. En bas est représentée une coupe de l’impulsion de chauffage. Les trois carrés de la figure (b) et zones de la figure (c), verts, bleus, et rouges, correspondent aux spectres présentés à la figure 5.21, intégrés sur 120 pixels.

théorique du dioxyde de vanadium, juste avant le seuil d'absorption. Les courbes bleue et verte sont les spectres de référence du VO_2 non-excité. La courbe rouge est le spectre excité, obtenu pour un délai de 500 ps entre la pompe et la sonde. Il est important de signaler que l'obtention de la transmission (division de deux courbes) augmente le rapport signal sur bruit jusqu'à 0,8 %.

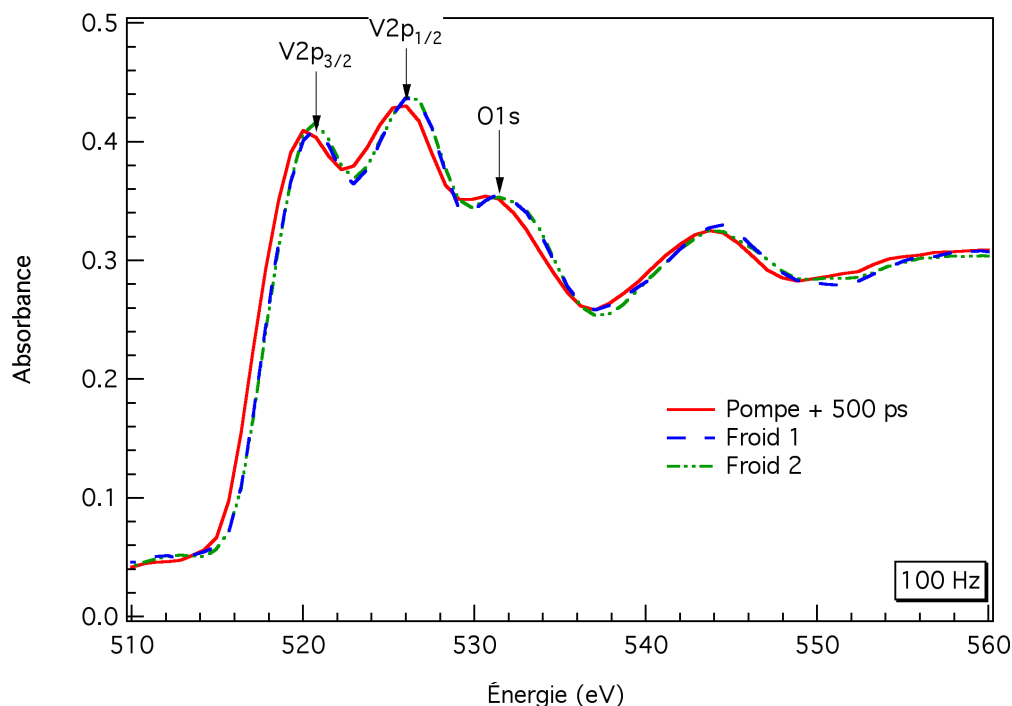


Figure 5.21 – Absorbance des spectres de VO_2 . Chaque courbe correspond à l'air d'intégration de 120 pixels, présenté sur la figure 5.20 (b e tc). La courbe rouge correspond à la partie excitée, alors que les courbes bleue et verte correspondent aux parties non-excitées.

Nous observons un décalage du spectre chauffé (courbes rouges) vers les basses énergies, de l'ordre de 0,5 - 1 eV, de toute la structure de XANES. Ce phénomène n'a pas été observé dans la littérature. Il est important de signaler que les différentes étapes de l'analyse ont été vérifiées attentivement pour assurer qu'il n'y a pas d'artefact expérimental expliquant ce décalage. Une raison pouvant expliquer ce décalage serait que les états des orbitales électroniques (autrement dit, les bandes d'énergie moléculaires) se rapprochent du niveau de Fermi. Cela justifierait le regroupement des bandes, corroboré par le fait que le VO_2 passe en effet d'un état semi-conducteur à métallique. Cependant, ce décalage n'a pas été observé en statique lors d'expériences réalisées sur un synchrotron, avec une meilleure résolution spectrale. Cet effet, s'il est réel, ne serait que transitoire.

La figure 5.22 présente la différence entre 2 signaux de référence (barres pleines), et entre une référence et le spectre excité (barres rouges). Cela permet d'observer d'une seconde manière la différence entre le signal excité ou non, et la fluctuation du signal. Sur cette figure est

également représentée la position des pics d'absorption de la figure 5.21.

Tout d'abord, on peut estimer le bruit à 0,8 % en regardant les fluctuations avant le seuil d'absorption (500 - 510 eV). Ensuite, on remarque dans la phase excitée (haute température) une augmentation de l'absorption au niveau du seuil L du vanadium (~ 515 eV), et une diminution du pic dû à l'oxygène (~ 530 eV). Cela correspond aux résultats de Cavalleri et al. (2004) et Abbate et al. (1991) présentés aux figures 5.2 et 5.5.

Le résultat obtenu sur notre système expérimental est en accord avec la dynamique précédemment observée, utilisant des sources de rayonnement X produites par des synchrotrons.

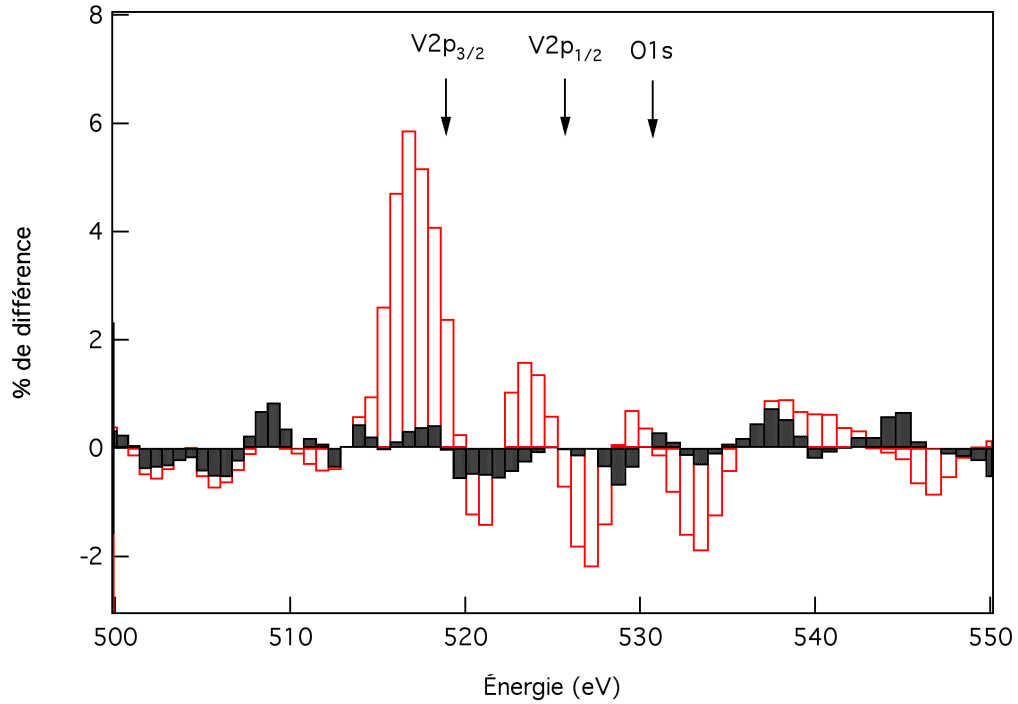


Figure 5.22 – Pourcentage de différence entre 2 spectres de référence (barres pleines) et entre un spectre excité et non-excité (barres rouges) de ceux présentés figure 5.21.

5.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude d'un système expérimental permettant d'atteindre les caractéristiques pour observer la transition de phase du VO_2 par absorption de rayonnement X.

Nous avons mis en place et caractérisé un spectromètre, basé sur un réseau en réflexion, permettant de sonder le seuil K de l'oxygène et le seuil L du vanadium. Ce spectromètre atteint une résolution de spectrale $\Delta E/E = 3,4 \times 10^{-3}$. Ensuite, nous avons étudié la source de

rayonnement X, afin de l'optimiser pour atteindre une brillance suffisante permettant d'obtenir un rapport signal sur bruit de l'ordre de 0,5 %. Enfin, nous avons mesuré l'absorbance du VO₂ en statique puis en dynamique. Ces résultats sont compatibles à ceux trouvés dans la littérature.

Pour conclure, le système expérimental mis en place atteint les caractéristiques appropriées pour réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption de rayonnement X, au moyen d'une source produite par interaction laser-matière.

Les résultats obtenus sont encourageants, et ce travail doit être poursuivi. Tout d'abord, il serait intéressant de reproduire le résultat obtenu en dynamique, puis de réaliser la mesure pour différents délais entre la pompe et la sonde. Aussi, en utilisant la caméra à balayage de fente, il serait possible de mesurer l'évolution de la structure XANES avec une résolution de quelques picosecondes.

Enfin, grâce aux caractéristiques du système, il serait envisageable de mesurer la structure d'EXAFS, permettant ainsi de suivre l'évolution de la structure cristalline en même temps que celle des bandes électroniques.

6.1 Synthèse

Dans ce mémoire, j'étudie la physique des milieux denses, plasmas ou solides, en utilisant la spectroscopie d'absorption de rayonnement X. Au moyen de sources produites par interaction laser-matière, nous avons mesuré les spectres d'absorption de plasmas d'aluminium et brome, ainsi que ceux du dioxyde de vanadium (VO_2). Les mesures des coefficients d'absorption permettent de sonder la matière dense et d'étudier ses propriétés. Les expériences sont réalisées suivant le même principe : elles utilisent un schéma expérimental identique, appelé pompe-sonde. De plus, la méthodologie d'analyse des résultats est similaire.

Lorsque que la matière est dense, l'absorption d'un atome est modifiée par le milieu environnant. Dans un plasma, ce sont principalement les transitions lié-lié qui sont influencées : la présence des transitions atomiques est dirigée en fonction de la densité et de la température, et les profils des raies spectrales sont modifiés. Dans un solide, les positions des atomes voisins de l'atome absorbeur modifient la structure des seuils d'absorption de celui-ci (transition lié-libre). L'étude de cette structure permet de mesurer les paramètres du matériau, et donne des informations comme l'état des bandes électroniques ou encore les distances interatomiques.

Pour réaliser les expériences de spectroscopie d'absorption, nous avons monté deux spectromètres. (1) Le premier a permis de sonder les transitions 1s-2p et 1s-3p d'un plasma d'aluminium, ainsi que les transitions 2p-3d d'un plasma de brome, entre 1480 et 1600 eV. De plus, un diagnostic d'interférométrie dans le domaine des fréquences (FDI) couplé avec une simulation hydrodynamique (MULTI-FS) nous a permis de mesurer les conditions thermodynamiques du plasma sondé, de manière indépendante du spectre d'absorption. (2) Le second, fonctionnant dans la gamme XUV, entre 1 et 5 nm, nous a permis de sonder les seuils K de l'oxygène et L du vanadium dans du VO_2 (500 - 560 eV). Cette gamme d'énergie

permet également d'accéder à la fenêtre de l'eau, bien connue pour être d'importance pour les systèmes biologiques.

Les expériences réalisées au LULI ont permis de sonder des plasmas dans le régime mal connu de la *Warm Dense Matter*. Un des paramètres clés, est que le plasma est caractérisé de manière indépendante (diagnostic FDI). Cela permet une meilleure comparaison de l'absorption de rayonnement X mesurée avec un calcul réalisé avec le modèle numérique OPA-S. Nous avons mesuré et comparé quantitativement les opacités spectrales de plasma dense et chaud, d'aluminium et de brome. Avec l'aluminium, nous avons mis en évidence un comportement physique complexe des régions spectrales proches des seuils d'absorption. L'analyse des résultats obtenus avec le brome, élément de numéro atomique moyen ($Z = 35$), a permis de mettre en évidence qu'il fallait prendre en compte la relaxation des orbitales pour restituer correctement le spectre expérimental. Les mesures ont permis de tester le code OPA-S dans des conditions très sensibles aux effets de l'environnement, dans des milieux de forte densité (WDM) encore très peu explorés expérimentalement.

Les expériences réalisées à l'INRS ont permis de réaliser un système expérimental ayant les caractéristiques permettant l'étude de la dynamique de solides présentant des transitions de phase ultra-rapides. Pour cela, nous avons utilisé le dioxyde de vanadium comme système modèle permettant de tester la faisabilité de la méthode. L'utilisation des sources de rayonnement X produites par laser présente de nombreux avantages pour ces études, comme une relative facilité d'accès par rapport aux grands instruments, et la possibilité de synchroniser deux événements ultra-courts (la pompe et la sonde). Elle permet également de mesurer tout le spectre d'absorption au même instant. Nous avons obtenu quelques résultats préliminaires en statique et en dynamique permettant d'envisager des études plus poussées des transitions de phase.

6.2 Perspectives

Les expériences au cours de ce doctorat nous ont apporté beaucoup de résultats intéressants, jalons importants pour les études des phénomènes transitoires par spectroscopie d'absorption de rayonnement X. Nous pouvons envisager des perspectives qui sont de deux ordres. La première est commune aux deux expériences et concerne l'amélioration de la source de rayonnement X. Les secondes sont spécifiques à la physique des plasmas et des solides.

6.2.1 Perspective générale

Une première perspective, commune aux deux études, concerne l'amélioration des dispositifs expérimentaux. En effet, il serait possible d'améliorer la résolution temporelle des mesures.

Cela permettrait d'affiner les mesures des spectres d'absorption à des instants bien définis, afin de sonder des événements très courts, permettant ainsi de préciser les modèles théoriques. Deux méthodes sont envisageables.

Premièrement, il est possible de réduire la durée d'émission de la source de rayonnement X. Pour cela, il existe des méthodes types rayonnement « bétatron », ou génération d'harmonique permettant d'atteindre des durées de l'ordre de celle de l'impulsion laser voire même attoseconde (10^{-18} s). Une autre piste est le chauffage isochorique. En effet, les nouvelles générations de lasers de puissance permettent d'atteindre des contrastes en intensité très élevés, permettant ainsi de chauffer la matière à des températures très élevées, et créer un plasma qui se détend très rapidement. Plus le plasma se détendra rapidement, plus la durée de la source de rayonnement X sera courte.

Deuxièmement, il est également possible d'améliorer la résolution des caméras à balayage de fente plus performantes. Ces dernières sont en constante évolution, et permettent déjà d'obtenir des résolutions de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes.

6.2.2 Perspectives spécifiques

Dans un deuxième ordre d'idées, les perspectives envisagées sont plus spécifiques à chacune des expériences réalisées. L'amélioration de la source de rayonnement X, en réduisant sa durée d'émission, permettrait d'affiner les mesures d'absorption, mais il y existe également d'autres voies à envisager.

Physique des plasmas

L'amélioration de la durée d'émission de la source de rayonnement X permettrait de mesurer plus précisément l'évolution des raies d'absorption proches des seuils, au tout début du chauffage laser, c'est-à-dire lors de la transition solide/plasma. Il serait donc possible de quantifier la frontière entre ces deux régimes. En effet, cette transition est très mal décrite, et les codes numériques ont besoins de mesures expérimentales afin de valider les modèles physiques utilisés.

De plus, nous avons montré que l'utilisation de cibles multi-couches permet de réduire d'un ordre de grandeur les gradients de densité. Réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption avec ce type de cibles permettrait également de perfectionner les mesures, et de contraindre les simulations numériques dans des régimes plus étroits en densité et en température.

Aussi, l'utilisation d'un faisceau de protons permettrait de chauffer la matière en profondeur, permettant d'atteindre d'autres régimes de densité et de température, afin de réaliser d'autres points de mesure dans le régime peu exploré de la *Warm Dense Matter*.

Transition de phase

Il serait intéressant de reproduire le résultat obtenu en dynamique, puis de réaliser la mesure à différents temps. Aussi, en utilisant la caméra à balayage de fente, il serait possible de mesurer l'évolution de la structure XANES avec une résolution de quelques picosecondes. Enfin, grâce aux caractéristiques du système, il serait envisageable de mesurer la structure d'EXAFS, permettant ainsi de suivre l'évolution de la structure cristalline en même temps que celle des bandes électroniques.

Il est également envisageable de mesurer les spectres de XAS de matériaux plus complexes, ayant un intérêt en biologie ou en médecine comme la myoglobine, voire même l'hémoglobine.

Liste de mes publications

Publications

1. **L. Lecherbourg**, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J.-P. Geindre, C. Blancard, P. Cossé, G. Faussurier, R. Shepherd, et P. Audebert, Measurements of spectral properties of ultra-fast warm dense aluminum plasma, High Energy Density Physics 3 (2007).
2. S. Bastiani-Ceccotti, N. Kontogiannopoulos, J.-R. Marques, S. Tzortzakis, **L. Lecherbourg**, F. Thais, I. Matsushima, O. Peyrusse, et C. Chenais-Popovics, Analysis of the X-ray and time-resolved XUV emission of laser produced Xe and Kr plasmas, High Energy Density Physics 3 (2007).
3. S. Fourmaux, **L. Lecherbourg**, M. Harmand, M. Servol, et J.C. Kieffer, High repetition rate laser produced soft x-ray source for XANES measurements, accepté par RSI.

Proceedings

1. C. Martel, S. Fourmaux, **L. Lecherbourg**, H. Bandulet, and J. C. Kieffer, New ultra fast x-ray streak camera for the advanced laser light source facility, Proc. SPIE 6703, 67030K (2007).
2. S. Fourmaux, **L. Lecherbourg**, M. Chagnon, H. C. Bandulet, P. Audebert, et J. C. Kieffer, New 100-Hz repetition rate soft x-ray laser plasma source for ultrafast XANES applications, Proc. SPIE 6703, 67030D (2007).

3. P. Renaudin, **L. Lecherbourg**, C. Blancard, P. Cossé, G. Faussurier, P. Audebert, S. Bastiani-Ceccotti, J.-P. Geindre, et R. Shepherd, X-Ray Absorption Spectroscopy Of Thin Foils Irradiated By An Ultra-short Laser Pulse, AIP Conf. Proc. 926, 24 (2007).
4. C. A. Back, P. Audbert, S. D. Baton, S. Bastiani-Ceccotti, P. Guillou, **L. Lecherbourg**, B. Barbrel, E. Gauci, M. Koenig, L. Gremillet, C. Rousseaux, E. Giraldez, et S. Phommarine, Study of Non-LTE Spectra Dependence on Target Mass in Short Pulse Laser Experiments, AIP Conf. Proc. 926, 19 (2007).
5. C. Martel, S. Fourmaux, C. Y. Côté, S. Magnan, **L. Lecherbourg**, et J. C. Kieffer, Development of streak cameras for time-resolved experiments at the advanced laser light source laboratory, Proc. SPIE 6279, 627909 (2007).
6. **L. Lecherbourg**, S. Fourmaux, J.C. Kieffer, F. Martin, H. Pépin, M. Chaker, S. Magnan, et C.Y. Coté, Source X-UV pour la spectroscopie d'absorption en régime femtoseconde, Proc. UVX (2006).
7. S. Bastiani-Ceccotti, S. Tzortzakis, J.-R. Marques, **L. Lecherbourg**, F. Thais, I. Matsushima, O. Peyrusse, et C. Chenais-Popovics, X and time-resolved XUV emission of laser produced Xe and Kr plasmas, Proc. EPS 301, P-5.059 (2006) & Journal de physique IV (133), 957-962, June 2006.
8. S. Fourmaux, **L. Lecherbourg**, J. C. Kieffer, F. Martin, H. Pépin, M. Chaker, S. Magnan, et C. Y. Coté, Study of a soft x-ray (1-5 nm) laser plasma source for femtosecond time resolved XAS, Proc. SPIE 5920, 592004 (2005).

Bibliographie

- ABBATE, M., F. M. F. DE GROOT, J. C. FUGGLE, Y. J. MA, C. T. CHEN, ET AL., 1991.** Soft-x-ray-absorption studies of the electronic-structure changes through the VO_2 phase transition. Physical Review B, volume 43, no. 9 pages 7263–7266.
- ANDIEL, U., K. EIDMANN, & K. WITTE, 2001.** Time-resolved x-ray K-shell spectra from high density plasmas generated by ultrashort laser pulses. Physical Review E, volume 63, no. 2 page 026407.
- ANDRE, P. & A. LEFORT, 1998.** The influence of thermal disequilibrium on a plasma consisting of insulator vapours. Journal of Physics D-Applied Physics, volume 31, no. 6 pages 717–729.
- ASHCROFT, N. W. & N. D. MERMIN, 1976.** Solid State Physics. Saunders College.
- AUDEBERT, P., P. RENAUDIN, S. BASTIANI-CECCOTTI, J.-P. GEINDRE, C. CHENAIS-POPOVICS, ET AL., 2005.** Picosecond Time-Resolved X-Ray Absorption Spectroscopy of Ultrafast Aluminum Plasmas. Physical Review Letters, volume 94, no. 2 025004.
- BACK, C. A., C. CHENAIS-POPOVICS, P. RENAUDIN, J. P. GEINDRE, P. AUDEBERT, ET AL., 1992.** Study of K α absorption structures in a subcritical-density laser-produced plasma. Physical Review A, volume 46, no. 6 pages 3405–3412.
- BACK, C. A., T. S. PERRY, D. R. BACH, B. G. WILSON, C. A. IGLESIAS, ET AL., 1997.** Opacity measurements : Extending the range and filling in the gaps. Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer, volume 58, no. 4-6 pages 415–425.
- BALMER, J., C. L. S. LEWIS, R. E. CORBETT, E. ROBERTSON, S. SAADAT, ET AL., 1989.** X-ray absorption spectroscopy of laser-produced plasmas : A study of the experiment and data analysis. Physical Review A, volume 40, no. 1 pages 330–340.

- BAR-SHALOM, A., J. OREG, W. H. GOLDSTEIN, D. SHVARTS, & A. ZIGLER, 1989.** Super-transition-arrays : A model for the spectral analysis of hot, dense plasma. Physical Review E, volume 40, no. 6 pages 3183–3193.
- BAR-SHALOM, A., J. OREG, & M. KLAPISCH, 1997.** Collisional radiative model for heavy atoms in hot non-local-thermodynamical-equilibrium plasmas. Physical Review E, volume 56, no. 1 pages R70–R73.
- BARGMANN, V., 1952.** On the number of bound states in a central field of force. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, volume 38, no. 11 pages 961–966.
- BAUCHE, J. & C. BAUCHE-ARNOULT, 1987.** Level and line statistics in atomic spectra. Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics, volume 20, no. 8 pages 1659–1677.
- BAUCHE-ARNOULT, C., J. BAUCHE, & M. KLAPISCH, 1979.** Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra. Phys. Rev. A, volume 20, no. 6 pages 2424–2439.
- BAUCHE-ARNOULT, C., J. BAUCHE, & M. KLAPISCH, 1982.** Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra. II. Configurations with more than two open subshells. Physical Review A, volume 25, no. 5 pages 2641–2646.
- BECKER, M. F., A. B. BUCKMAN, R. M. WALSER, T. LEPINE, P. GEORGES, ET AL., 1994.** Femtosecond laser excitation of the semiconductor-metal phase-transition in VO₂. Applied Physics Letters, volume 65, no. 12 pages 1507–1509.
- BELZILE, C., J. C. KIEFFER, C. Y. COTE, T. OKSENHENDLER, & D. KAPLAN, 2002.** Jitter-free subpicosecond streak cameras (invited). Review of Scientific Instruments, volume 73, no. 3 pages 1617–1620.
- BIERMANN, S., A. POTERYAEV, A. I. LICHTENSTEIN, & A. GEORGES, 2005.** Dynamical Singlets and Correlation-Assisted Peierls Transition in VO₂. Physical Review Letters, volume 94, no. 2 026404.
- BLANC, P., P. AUDEBERT, F. FALLIES, J. P. GEINDRE, J. C. GAUTHIER, ET AL., 1996.** Phase dynamics of reflected probe pulses from sub-100-fs laser-produced plasmas. Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, volume 13, no. 1 pages 118–124.
- BLANCARD, C. & G. FAUSSURIER, 2003.** Tests of the SCAALP model for the case of a non-LTE steady-state xenon plasma. Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer, volume 81, no. 1-4 pages 65–70.

- BLANCARD, C. & G. FAUSSURIER, 2004.** Equation of state and transport coefficients for dense plasmas. Physical Review E, volume 69, no. 1 016409.
- BLENSKI, T. & K. ISHIKAWA, 1995.** Pressure ionization in the spherical ion-cell model of dense plasmas and a pressure formula in the relativistic Pauli approximation. Physical Review E, volume 51, no. 5 pages 4869–4881.
- BORN, M. & E. WOLF, 1980.** Principles of Optics. Oxford.
- BRASSARD, D., S. FOURMAUX, M. JEAN-JACQUES, J. C. KIEFFER, & M. A. EL KHAKANI, 2005.** Grain size effect on the semiconductor-metal phase transition characteristics of magnetron-sputtered VO₂ thin films. Applied Physics Letters, volume 87, no. 5 page 051910.
- BRUNEAU, J., 1984.** Correlation and relaxation effects in Ns²-NsNp transitions. Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics, volume 17, no. 15 pages 3009–3028.
- BURGESS, D. D. & R. W. LEE, 1982.** High-density plasma effects on atomic and ionic spectra. Journal de physique, volume 43, no. NC2 pages 413–432.
- CAVALLERI, A., H. H. W. CHONG, S. FOURMAUX, T. E. GLOVER, P. A. HEIMANN, ET AL., 2004.** Picosecond soft x-ray absorption measurement of the photoinduced insulator-to-metal transition in VO₂. Physical Review B, volume 69, no. 15 153106.
- CAVALLERI, A., M. RINI, H. H. W. CHONG, S. FOURMAUX, T. E. GLOVER, ET AL., 2005.** Band-Selective Measurements of Electron Dynamics in VO₂ Using Femtosecond Near-Edge X-Ray Absorption. Physical Review Letters, volume 95, no. 6 067405.
- CAVALLERI, A., C. TÓTH, C. W. SIDERS, J. A. SQUIER, F. RÁKSI, ET AL., 2001.** Femtosecond Structural Dynamics in VO₂ during an Ultrafast Solid-Solid Phase Transition. Physical Review Letters, volume 87, no. 23 page 237401.
- CHENAIS-POPOVICS, C., 2002.** Astrophysics in laboratory : Opacity measurements. Laser and Particle Beams, volume 20, no. 2 pages 291–298.
- CHENAIS-POPOVICS, C., P. AUDEBERT, V. NAGELS, J.-P. J. GEINDRE, J.-C. J. GAUTHIER, ET AL., 2004.** Measurement of the time-resolved x-ray emission of different elements irradiated with a subpicosecond high-power laser. pages 205–212. SPIE.
- CHENAIS-POPOVICS, C., C. FIEVET, J. P. GEINDRE, I. MATSUSHIMA, & J. C. GAUTHIER, 1990.** Saturation effects in K α absorption spectroscopy of laser-produced plasmas. Physical Review A, volume 42, no. 8 pages 4788–4794.
- CHENAIS-POPOVICS, C. J., P. AUDEBERT, M. FAJARDO, R. L. SHEPHERD, O. PEYRUSSE, ET AL., 2001.** Temporal and spectral dependence of samarium x-ray emission in subpicosecond and nanosecond laser-produced plasmas. pages 194–197. SPIE.

- COLOMBIER, J. P., 2005. Théorie et simulation de l'interaction des impulsions laser ultracourtes à flux modéré avec un solide métallique. Ph.D. thesis, Université Jean Monnet de Saint-Étienne.
- DELCROIX, J.-L. & A. BERS, 1994. Physique des Plasmas, volume 1 and 2.
- DIMITRIJEVIC, M. S. & N. KONJEVIC, 1987. Simple estimates for Stark-broadening of ion lines in stellar plasmas. *Astronomy and Astrophysics*, volume 172, no. 1-2 pages 345–349.
- EIDMANN, K., J. MEYER-TER VEHN, T. SCHLEGEL, & S. HÜLLER, 2000. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter. *Physical Review E*, volume 62, no. 1 pages 1202–1214.
- FUJIKAWA, C., N. YAMAGUCHI, T. HARA, T. KAWACHI, H. OYAMA, ET AL., 1998. In situ calibration of a flat-field grazing incidence spectrograph with an x-ray charge-coupled device camera using a transmission grating and a laser-produced plasma for x-ray laser research. *Review of Scientific Instruments*, volume 69, no. 8 pages 2849–2853.
- GALLANT, P., P. FORGET, F. DORCHIES, Z. JIANG, J. C. KIEFFER, ET AL., 2000. Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments. *Review of Scientific Instruments*, volume 71, no. 10 pages 3627–3633.
- GEINDRE, J. P., P. AUDEBERT, S. REBIBO, & J. C. GAUTHIER, 2001. Single-shot spectral interferometry with chirped pulses. *Optics Letters*, volume 26, no. 20 pages 1612–1614.
- GOODENOUGH, J. B., 1971. 2 components of crystallographic transition in VO₂. *Journal of Solid State Chemistry*, volume 3, no. 4 page 490.
- HENKE, B. L., E. M. GULLIKSON, & J. C. DAVIS, 1993. X-ray interactions - Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E=50-30,000 eV, Z=1-92. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, volume 54, no. 2 pages 181–342.
- HERZBERG, G., 1965. Spectra of Diatomic Molecules, volume 1. D. Van Nostrand Company Inc., 2nd edition.
- HUBBELL, J. H., W. J. VEIGELE, E. A. BRIGGS, R. T. BROWN, D. T. CROMER, ET AL., 1975. Atomic form factors, incoherent scattering functions, and photon scattering cross sections. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, volume 4, no. 3 pages 471–538.
- IMADA, M., A. FUJIMORI, & Y. TOKURA, 1998. Metal-insulator transitions. *Reviews of Modern Physics*, volume 70, no. 4 pages 1039–1263.

- JANESICK, J. R.**, T. S. ELLIOTT, A. DINGIZIAM, R. A. BREDTHAUER, C. E. CHANDLER, ET AL., **1990**. New advancements in charge-coupled device technology : subelectron noise and 4096 x 4096 pixel CCDs. pages 223–237. SPIE.
- JOHNSTON, T. W.** & J. M. DAWSON, **1973**. Correct values for high-frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas. Physics of Fluids, volume 16, no. 5 pages 722–722.
- LEE, P. A.**, P. H. CITRIN, P. EISENBERGER, & B. M. KINCAID, **1981**. Extended X-ray absorption fine-structure - Its strengths and limitations as a structural tool. Reviews of Modern Physics, volume 53, no. 4 pages 769–806.
- LEE, R. W.**, S. J. MOON, H. K. CHUNG, W. ROZMUS, H. A. BALDIS, ET AL., **2003**. Finite temperature dense matter studies on next-generation light sources. Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics, volume 20, no. 4 pages 770–778.
- LEE, T.**, Y. JIANG, C. G. ROSE-PETRUCK, & F. BENESCH, **2005**. Ultrafast tabletop laser-pump–x-ray probe measurement of solvated $\text{Fe}(\text{CN})_6^{4-}$. The Journal of Chemical Physics, volume 122, no. 8 084506.
- LINDL, J. D.**, P. AMENDT, R. L. BERGER, S. G. GLENDINNING, S. H. GLENZER, ET AL., **2004**. The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the National Ignition Facility. Physics of Plasmas, volume 11, no. 2 pages 339–491.
- MACFARLANE, J. J.**, J. E. BAILEY, G. A. CHANDLER, C. DEENEY, M. R. DOUGLAS, ET AL., **2002**. X-ray absorption spectroscopy measurements of thin foil heating by Z-pinch radiation. Physical Review E, volume 66, no. 4 page 046416.
- MARTINOLLI, E.**, **2003**. Transport d'électrons relativistes dans une cible solide : Etude du chauffage dans le cadre de l'allumage rapide. Ph.D. thesis, École Polytechnique.
- MERDJI, H.**, T. MISSALLA, T. BLENSKI, F. PERROT, J. C. GAUTHIER, ET AL., **1998**. Absorption spectroscopy of a radiatively heated samarium plasma. Physical Review E, volume 57, no. 1 pages 1042–1046.
- MILCHBERG, H. M.**, R. R. FREEMAN, S. C. DAVEY, & R. M. MORE, **1988**. Resistivity of a Simple Metal from Room Temperature to 10^6 K. Physical Review Letters, volume 61, no. 20 pages 2364–2367.
- MORE, R. M.**, K. H. WARREN, D. A. YOUNG, & G. B. ZIMMERMAN, **1988**. A new quotidian equation of state (QEOS) for hot dense matter. Physics of Fluids, volume 31, no. 10 pages 3059–3078.
- MORIN, F. J.**, **1959**. Oxides Which Show a Metal-to-Insulator Transition at the Neel Temperature. Physical Review Letters, volume 3, no. 1 pages 34–36.

- MOSZKOWSKI, S. A., 1962. On the energy distribution of terms and line arrays in atomic spectra. Progress of Theoretical Physics, volume 28, no. 1 pages 1–23.
- MOUROU, G. & W. KNOX, 1980. A picosecond jitter streak camera. Applied Physics Letters, volume 36, no. 8 pages 623–626.
- NAGELS-SILVERT, V., 2004. Validation expérimentale des codes de physique atomique des plasmas hors-équilibre thermodynamique local. Ph.D. thesis, École Polytechnique.
- NAKANO, H., Y. GOTO, P. LU, T. NISHIKAWA, & N. UESUGI, 1999. Time-resolved soft x-ray absorption spectroscopy of silicon using femtosecond laser plasma x rays. Applied Physics Letters, volume 75, no. 16 pages 2350–2352.
- NAKANO, N., H. KURODA, T. KITA, & T. HARADA, 1984. Development of a flat-field grazing-incidence XUV spectrometer and its application in picosecond XUV spectroscopy. Applied Optics, volume 23, no. 14 pages 2386–2392.
- NG, A., P. CELLIERS, G. XU, & A. FORSMAN, 1995. Electron-ion equilibration in a strongly coupled plasma. Physical Review E, volume 52, no. 4 pages 4299–4310.
- PAQUET, D. & P. LEROUX-HUGON, 1980. Electron correlations and electron-lattice interactions in the metal-insulator, ferroelastic transition in VO_2 : A thermodynamical study. Physical Review B, volume 22, no. 11 pages 5284–5301.
- PERRY, T. S., S. J. DAVIDSON, F. J. D. SERDUKE, D. R. BACH, C. C. SMITH, ET AL., 1991. Opacity measurements in a hot dense medium. Physical Review Letters, volume 67, no. 27 pages 3784–3787.
- PERRY, T. S., P. T. SPRINGER, D. F. FIELDS, D. R. BACH, F. J. D. SERDUKE, ET AL., 1996. Absorption experiments on x-ray-heated mid-Z constrained samples. Physical Review E, volume 54, no. 5 pages 5617–5631.
- PEYRUSSE, O., 1994. X-ray spectroscopy studies using the TRANSPEC code. Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer, volume 51, no. 1-2 pages 281–289.
- PEYRUSSE, O., 1999. Atomic configuration averages and non-local thermodynamical equilibrium plasma spectroscopy calculations. Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics, volume 32, no. 3 pages 683–700.
- RAKSI, F., K. R. WILSON, Z. M. JIANG, A. IKHLEF, C. Y. COTE, ET AL., 1996. Ultrafast x-ray absorption probing of a chemical reaction. Journal of Chemical Physics, volume 104, no. 15 pages 6066–6069.
- RAMIS, R., R. SCHMALZ, & J. MEYERTERVEHN, 1988. MULTI - A computer code for one-dimensional multigroup radiation hydrodynamics. Computer Physics Communications, volume 49, no. 3 pages 475–505.

- REBIBO, S., 2000.** Interférométrie à haute résolution temporelle d'un plasma créé par l'interaction d'une impulsion ultra brève et intense (35 fs, 10^{17} W/cm²) avec une cible solide. Ph.D. thesis, École Polytechnique.
- RENAUDIN, P., C. BLANCARD, J. BRUNEAU, G. FAUSSURIER, J. E. FUCHS, ET AL., 2006.** Absorption experiments on X-ray-heated magnesium and germanium constrained samples. Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer, volume 99, no. 1-3 pages 511–522.
- ROCHAU, G. A., J. E. BAILEY, & J. J. MACFARLANE, 2005.** Measurement and analysis of X-ray absorption in Al and MgF₂ plasmas heated by Z-pinch radiation. Physical Review E, volume 72, no. 6 066405.
- SCHOENLEIN, R. W., S. CHATTOPADHYAY, H. H. W. CHONG, T. E. GLOVER, P. A. HEIMANN, ET AL., 2000.** Generation of femtosecond pulses of synchrotron radiation. Science, volume 287, no. 5461 pages 2237–2240.
- SPITZER, L. J., 1956.** Physics of Fully Ionized Gases. Interscience Publishers, New York.
- STEWART, J. C. & K. D. PYATT, 1966.** Lowering of ionization potentials in plasmas. Astrophysical Journal, volume 144, no. 3 page 1203.
- STRICKLAND, D. & G. MOUROU, 1985.** Compression of amplified chirped optical pulses. Optics Communications, volume 56, no. 3 pages 219–221.
- TALMAN, J. D., 1989.** A program to compute variationally optimized effective atomic potentials. Computer Physics Communications, volume 54, no. 1 pages 85–94.
- TURCK-CHIEZE, S., S. COUVIDAT, L. PIAU, J. FERGUSON, P. LAMBERT, ET AL., 2004.** Surprising Sun : A New Step Towards a Complete Picture? Physical Review Letters, volume 93, no. 21 211102.
- VOGT, U., T. WILHEIN, H. STIEL, & H. LEGALL, 2004.** High resolution x-ray absorption spectroscopy using a laser plasma radiation source. Review of Scientific Instruments, volume 75, no. 11 pages 4606–4609.
- WENTZCOVITCH, R. M., W. W. SCHULZ, & P. B. ALLEN, 1994.** VO₂ : Peierls or Mott-Hubbard? A view from band theory. Physical Review Letters, volume 72, no. 21 pages 3389–3392.
- WINHART, G., K. EIDMANN, C. A. IGLESIAS, & A. BAR-SHALOM, 1996.** Measurements of extreme uv opacities in hot dense Al, Fe, and Ho. Physical Review E, volume 53, no. 2 pages R1332–R1335.

- WINHART, G., K. EIDMANN, C. A. IGLESIAS, A. BAR-SHALOM, E. MINGUEZ, ET AL., **1995**. XUV opacity measurements and comparison with models. *Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer*, volume 54, no. 1-2 pages 437–446.
- WORKMAN, J., M. NANTEL, A. MAKSIMCHUK, & D. UMSTADTER, **1997**. Application of a picosecond soft x-ray source to time-resolved plasma dynamics. *Applied Physics Letters*, volume 70, no. 3 pages 312–314.
- YAKOVLEV, D. G. & V. A. URPIN, **1980**. On thermal and electrical conductivities in neutron stars and white-dwarfs. *Astronomicheskii Zhurnal*, volume 57, no. 3 pages 526–536.
- ZENG, J., F. JIN, J. YUAN, Q. LU, & Y. SUN, **2000**. Detailed-term-accounting-approximation simulation of x-ray transmission through laser-produced Al plasmas. *Physical Review E*, volume 62, no. 5 pages 7251–7257.